

UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE
Faculté de génie
Département de génie chimique

CONTRIBUTION À LA CARACTÉRISATION DU RÉACTEUR
À LIT SOUFFLÉ PAR PLASMA
APPLICATION DANS UN PROCÉDÉ DE GAZÉIFICATION
DU COKE DE PÉTROLE

Thèse de Doctorat es sciences appliquées
Spécialité: Génie chimique

Hassan HAMDI

Sherbrooke (Québec), CANADA

Septembre 2000



**National Library
of Canada**

**Acquisitions and
Bibliographic Services**

**395 Wellington Street
Ottawa ON K1A 0N4
Canada**

**Bibliothèque nationale
du Canada**

**Acquisitions et
services bibliographiques**

**395, rue Wellington
Ottawa ON K1A 0N4
Canada**

Your file Votre référence

Our file Notre référence

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-67584-X

Canada

Je dédie cette thèse à ma famille

et à tous mes amis (es)

RÉSUMÉ

Le travail présenté dans cette thèse est consacré à la caractérisation et à la conception et réalisation d'un réacteur chimique à lit soufflé par plasma dans lequel certaines opérations telles que: traitement de minéral, gazéification et traitement de déchets solide pourraient être envisagées. La caractérisation comprend l'étude de l'hydrodynamique, du transfert de chaleur et de l'attrition dans le réacteur. À la dernière phase du projet, la gazéification du coke de pétrole par le dioxyde de carbone a été explorée.

Une attention particulière a été accordée à l'étude de l'hydrodynamique qui conditionne le bon fonctionnement du réacteur. La géométrie à la base du réacteur s'avère être un paramètre de design important qui influence l'existence de zones de poudre stagnantes et la circulation dans le lit. L'étude paramétrique, incluant l'angle de cône comme paramètre géométrique, a permis d'établir deux corrélations qui permettent de prédire le point de transition lit fixe-lit soufflé. Les paramètres opératoires variés sont la taille des particules, le débit de gaz plasma et la puissance d'alimentation de la torche. Une taille de poudre critique en bas de laquelle le lit soufflé par plasma est instable a été déterminée. Elle est de l'ordre de 0.450 mm pour le solide utilisé (Alumine). Les corrélations établies montrent que l'hydrodynamique est contrôlée par les conditions à l'entrée du réacteur: température enthalpique et vitesse du jet.

L'étude du transfert de chaleur est basée sur les bilans d'énergie sur les différents éléments du système: torche, réacteur et solide granuleux. Un modèle global pour l'estimation de la température moyenne du lit qu'on peut atteindre sous différentes conditions opératoires a été mis au point. Le modèle montre l'importance des pertes thermiques et leur influence sur le niveau de température maximal réalisable en régime permanent. Les pertes mesurées montrent l'importance des pertes radiatives, par la fontaine au dessus du lit, qui représentent 60 % de l'énergie thermique injectée dans le lit.

L'étude de l'attrition a montré que l'attrition est d'autant plus sévère que la puissance d'opération est élevée et que la taille des particules est plus grande. Dans la gamme des conditions d'opération étudiée, le taux de fines produits varie de 4 à 33% de la charge solide dans le réacteur. La réduction du diamètre moyen de la poudre varie de 4 à 59% de la taille

moyenne de la poudre initiale. La fragmentation des particules par chocs thermiques et chocs inter particules dans le jet contribue de manière importante à l'attrition dans le réacteur à puissance d'opération élevée. La mesure du facteur de forme des particules avant et après traitement dans le réacteur a montré une sphéroïdisation des particules. Ce phénomène étant du à la fusion partielle de la surface des particules (plus important pour les particules de faible taille) et à la régularisation de la forme par friction inter particules dans l'anneau ainsi que par chocs inter particules dans le jet.

La gazéification du coke de pétrole par le dioxyde de carbone a permis de tester l'utilisation du procédé à lit soufflé par plasma comme réacteur chimique solide/gaz. Le taux spécifique de gazéification obtenu au cours des expériences varie entre $183 \cdot 10^{-5}$ et $334 \cdot 10^{-5}$ g/g/min. Ces taux sont de 3 à 6 fois supérieurs à ceux mesurés par certain auteurs dans les mêmes conditions d'opération: température, pression totale et pression partielle de CO_2 . Les taux élevés obtenus sont attribués à plusieurs facteurs:

- La contribution du plasma dans le processus réactionnel par dissociation d'une fraction de CO_2 (10 %).
- Le coke de pétrole utilisé n'est pas complètement pyrolysé ce qui augmente sa réactivité.
- L'attrition caractéristique des lits soufflés est favorable à la réaction de gazéification.

L'efficacité énergétique du réacteur peut être améliorée par un meilleur contrôle de son hydrodynamique et la réduction des pertes thermiques. L'élutriation importante observée dans le cas de particules de coke fin ($d_p < 0.425 \text{ mm}$) diminue l'efficacité du réacteur. Une grande importance doit être accordée à ce phénomène dans le choix des applications. La taille de solide critique dépend des conditions hydrodynamiques d'opération (vitesse du gaz) et de la densité du solide.

REMERCIEMENTS

J'exprime ma reconnaissance à Monsieur le professeur Maher Boulos, directeur du C.R.T.P., pour m'avoir accueilli dans le laboratoire des plasmas et pour son soutien, ses conseils, ses encouragements et tout le support qu'il m'a fourni. Je remercie le professeur Jerzy Jurewicz pour son encadrement, son soutien, sa disponibilité, sa confiance, sa compréhension et sa patience durant toute la durée de ce travail.

Mes remerciements s'adressent également au professeur Richard J. Munz qui me fait l'honneur d'accepter de juger ce travail ainsi qu'aux professeurs Maher Boulos, Jerzy Jurewicz et Denis Gravelle qui m'honorent en acceptant d'être membres du jury de ma thèse.

Je tiens à remercier également Messieurs Serge Gagnon et Marc Couture, techniciens du C.R.T.P. pour leur support technique durant les phases de réalisation du montage expérimental. Je remercie particulièrement Monsieur Gérard Bédard, technicien du département de génie chimique, pour sa disponibilité, ses conseils techniques et pour tous les travaux qu'il a réalisés pour moi. Je remercie aussi Madame Andrée Paradis, secrétaire du C.R.T.P, pour sa gentillesse et sa disponibilité.

Que tous ceux qui de près ou de loin ont contribué à l'aboutissement de ce travail trouvent ici ma gratitude et mes sincères remerciements.

Je remercie la Banque Islamique pour le Développement (I.D.B) pour l'aide financière, dans le cadre des bourses de mérite, qu'elle m'a accordée.

TABLE DES MATIÈRES

RÉSUMÉ.....	ii
REMERCIEMENTS.....	iv
TABLE DES MATIÈRES.....	v
LISTE DES TABLEAUX.....	ix
LISTE DES FIGURES.....	xiv
 INTRODUCTION GÉNÉRALE.....	 1
 1. ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE.....	 4
1.1. Introduction.....	4
1.2. Lits soufflés/fluidisés par plasma.....	5
1.3. Hydrodynamique du lit soufflé.....	9
1.3.1 lit soufflé standard.....	10
1.3.2 Effet de la température.....	10
1.3.3 Hydrodynamique du lit soufflé par plasma.....	13
1.4. Transfert de chaleur.....	16
1.4.1 Dans le lit soufflé standard.....	16
1.4.2 Dans les lits soufflés/fluidisés par plasma.....	17
1.5. Attrition et élutriation	19
1.6. Conclusion.....	21
 2. HYDRODYNAMIQUE DU RÉACTEUR À LIT SOUFFLÉ PAR PLASMA DC.....	 23
2.1 Introduction.....	23
2.2 Montage d'étude préliminaire.....	24
2.2.1 Description du montage.....	25
2.2.2 Résultats et observations.....	27
2.3 Montage à colonne de quartz refroidie à l'eau.....	30
2.3.1 Description du montage.....	30
2.3.2 Résultats et observations.....	32
2.3.3 Cône de graphite 20 °.....	37
2.4 Étude de l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma DC.....	43
2.4.1 Montage expérimental.....	43
2.4.2 Paramètres influents.....	45
2.4.3 Paramètres étudiés.....	46
2.4.4 Diagramme des régimes hydrodynamiques du lit soufflé.....	48
2.4.5 Paramètres hydrodynamiques caractérisant le lit soufflé.....	50
2.4.6 Méthodologie.....	50
2.4.7 Observation des régimes.....	52
2.4.8 Hauteur du lit en fonction du débit de gaz.....	58

2.4.9	Vitesse minimale de soufflage.....	63
2.4.10	Corrélations antérieures.....	64
2.4.11	Analyse dimensionnelle.....	68
2.4.12	Corrélations proposées.....	70
2.4.13	Courbes de transition: lit fixe - lit soufflé.....	75
2.4.14	Analyse des effets des différents paramètres.....	78
2.5	Conclusions.....	89
3.	TRANSFERT DE CHALEUR DANS LE RÉACTEUR À LIT SOUFFLÉ PAR PLASMA DC.....	90
3.1	Introduction.....	90
3.2	Mécanismes de transfert de chaleur	90
3.2.1	Transfert dans la zone du jet.....	91
3.2.2	Transfert dans la zone annulaire.....	94
3.2.3	Transfert lit - paroi.....	95
3.3	Bilan Énergétique global.....	98
3.4	Bilan sur la torche.....	98
3.4.1	Variation de la tension avec le débit de gaz et le courant d'arc.....	99
3.4.2	Influence du % de N ₂	101
3.4.3	Rendement énergétique et puissance disponible.....	103
3.4.4	Enthalpie spécifique, température enthalpique et vitesse du jet.....	105
3.4.5	Influence des fluctuations du courant et de la tension d'arc.....	110
3.5	Bilan sur le réacteur.....	113
3.6	Bilan sur le solide.....	113
3.6.1	Température du gaz à la sortie du lit.....	114
3.6.2	Bilan sur le solide.....	116
3.6.3	Mesures des pertes thermiques.....	123
3.7	Mesures de température dans le lit.....	132
3.7.1	Mesures au cours des expériences de bilan.....	135
3.7.2	Mesure des profils de température dans le lit.....	139
3.8	Interprétations et conclusions.....	143
4.	ATTRITION ET ÉLUTRIATION.....	148
4.1	Introduction.....	148
4.2	Les mécanismes et les paramètres influents.....	149
4.2.1	Les propriétés des particules.....	149
4.2.2	Le temps.....	150
4.2.3	La vitesse.....	151
4.2.4	La pression.....	151
4.2.5	Le cisaillement.....	151
4.2.6	La température.....	151
4.2.7	La réaction chimique.....	151
4.3	Évaluation de l'attrition.....	152

4.3.1.	Évaluation de la susceptibilité à l'attrition.....	152
4.3.2	Taux d'attrition.....	153
4.4	Attrition dans le réacteur à lit soufflé.....	153
4.5	Matériel et méthode.....	155
4.5.1	Distribution de taille et diamètre moyen des particules.....	155
4.5.2	Détermination du facteur de forme des grains.....	156
4.5.3	Caractéristiques du matériel granuleux initial (avant traitement).....	156
4.6	Étude de l'attrition dans le réacteur à lit soufflé par plasma DC.....	159
4.6.1	Effet de la durée de traitement.....	161
4.6.2	Effet de la puissance.....	162
4.6.3	Taux de fines et évaluation de l'attrition.....	164
4.6.4	Effet de la taille des particules.....	166
4.6.5	Variation de la forme des particules après traitement.....	166
4.6.6	Élutriation.....	168
4.7	Conclusions.....	171
5.	GAZÉIFICATION DU COKE DE PÉTROLE DANS LE RÉACTEUR À LIT SOUFFLÉ PAR PLASMA DC.....	172
5.1	Introduction.....	172
5.1.1	Le coke de pétrole.....	172
5.1.2	Utilisations directes.....	172
5.1.3	Valorisation par gazéification.....	173
5.1.4	Objectifs de l'étude.....	174
5.2	Revue bibliographique.....	174
5.2.1	Thermodynamique de la gazéification.....	174
5.2.2	Réactions gaz-carbone.....	180
5.2.3	Cinétique de la réaction CO_2 - C.....	185
5.3	Matériel et méthodes.....	191
5.3.1	Montage expérimental.....	191
5.3.2	Mesures et analyses.....	196
5.3.3	coke de pétrole utilisé.....	198
5.3.4	Procédure.....	199
5.4	Résultats.....	199
5.4.1	Conditions opératoires.....	199
5.4.2	Température dans le lit.....	200
5.4.3	Attrition et élutriation.....	203
5.4.4	Taux de consommation du carbone.....	203
5.4.5	Taux spécifique moyen de gazéification.....	204
5.5	Analyse des résultats.....	206
5.5.1	Régime de contrôle.....	206
5.5.2	Ordre de réaction apparent.....	207
5.5.3	Mécanisme.....	208
5.5.4	Rôle du plasma.....	209

5.5.5	Performance.....	209
5.6	Conclusion.....	210
	CONCLUSION GÉNÉRALE.....	211
	BIBLIOGRAPHIE.....	217
	Appendice.....	226
Annexe A1	CALCUL DE LA HAUTEUR STATIQUE DU LIT A PARTIR DE LA MASSE DE SOLIDE CHARGÉE DANS LE RÉACTEUR.....	230
Annexe A2	CONDITIONS OPÉRATOIRES ET VALEURS MESURÉES POUR LES EXPÉRIENCES SUR L'ÉTUDE PARAMÉTRIQUE DE L'HYDRODYNAMIQUE.....	232
Annexe A3	ANALYSES CHIMIQUES.....	237
Annexe A4	ATTRITION ET ÉLUTRIATION AU COURS DE LA GAZÉIFICATION.....	243
Annexe A5	MODES D'UTILISATION DU SPECTROMÈTRE DE MASSE.....	252
Annexe A6	EXPÉRIENCES DE GAZÉIFICATION.....	255
Annexe A7	MESURE DE SURFACE SPÉCIFIQUE.....	280
Annexe A8	CALCUL DE L'ORDRE DE LA RÉACTION.....	283
Annexe A9	CONDITIONS THERMODYNAMIQUES DES EXPÉRIENCES DE GAZÉIFICATION.....	285
Annexe A10	CONDITIONS THERMIQUES DES EXPÉRIENCES DE GAZÉIFICATION.....	288
Annexe A11	CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES DES EXPÉRIENCES DE GAZÉIFICATION.....	291
	Nomenclature.....	293

LISTE DES TABLEAUX

TABEAU 1.1	CHAMPS D'APPLICATION DES LITS FLUIDISÉS PAR PLASMA (LFP) ET DES LITS SOUFLÉS PAR PLASMA (LSP).....	6
TABEAU 1.2	PROFILS DE TEMPÉRATURE DANS LE RÉACTEUR À LIT SOUFLÉ PAR PLASMA OPÉRÉ SOUS DIFFÉRENTES CONDITIONS [JUREWICZ et coll., 1985].....	19
TABEAU 2.1	CARACTÉRISTIQUES DU MATÉRIEL GRANULEUX UTILISÉ LORS DES EXPÉRIENCES DANS LE MONTAGE PRÉLIMINAIRE.....	27
TABEAU 2.2	CONDITIONS OPÉRATOIRES D'UNE EXPÉRIENCE MENÉE DANS LE MONTAGE PRÉLIMINAIRE (Al₂O₃ Grit 60).....	28
TABEAU 2.3	CONDITIONS OPÉRATOIRES D'UNE EXPÉRIENCE MENÉE DANS LE MONTAGE PRÉLIMINAIRE (Al₂O₃ Grit 30).....	29
TABEAU 2.4	CONDITIONS OPÉRATOIRES D'UNE EXPÉRIENCE MENÉE DANS LE MONTAGE À COLONNE DE QUARTZ (Al₂O₃ Grit 30).....	32
TABEAU 2.5	CONDITIONS OPÉRATOIRES D'UNE EXPÉRIENCE MENÉE DANS LE MONTAGE À COLONNE DE QUARTZ (Al₂O₃ Grit 60).....	34
TABEAU 2.6	CONDITIONS OPÉRATOIRES DES EXPÉRIENCES MENÉES DANS LE MONTAGE À COLONNE DE QUARTZ (cône 20°).....	38
TABEAU 2.7	LISTE ET GAMMES DE VARIATION DES PARAMÈTRES ÉTUDIÉS.....	47
TABEAU 2.8	CARACTÉRISTIQUES DES DIFFÉRENTES CATÉGORIES DE POUDRE UTILISÉES.....	48
TABEAU 2.9	CONDITIONS ÉNERGÉTIQUES POUR CHAQUE DÉBIT DE GAZ UTILISÉ DANS LES FIGURES 2.27 À 2.34.....	63
TABEAU 2.10	CORRÉLATIONS TESTÉES.....	65

TABEAU 2.11	RÉSULTATS DU TEST DES CORRÉLATIONS ET ÉQUATIONS OBTENUES.....	67
TABEAU 2.12	PARAMÈTRES DE CORRÉLATION ET COEFFICIENTS DE RÉGRESSION.....	71
TABEAU 2.13	DOMAINE DE VALIDITÉ DES CORRÉLATIONS ÉTABLIES POUR CHAQUE GROUPE ADIMENSIONNEL.....	75
TABEAU 2.14	VALEUR DE LA CONSTANCE n DANS LA LOI DE PUISSANCE $H = ka_p^n$ POUR LES COURBES DANS LES FIGURES 2.40 ET 2.41.....	81
TABEAU 2.15	VALEUR DE LA CONSTANCE n' DANS LA LOI DE PUISSANCE $U_{ms}^o = k' H^{n'}$ POUR LES COURBES DANS LES FIGURES 2.43 ET 2.44.....	87
TABEAU 3.1	VALEURS DE h_w CALCULÉES À PARTIR DE L'ÉQUATION 1.10 DANS LES CONDITIONS DE MINIMUM DE SOUFFLAGE (poudre Al_2O_3 Grit 30, cône 40°).....	119
TABEAU 3.2	CONDITIONS OPÉRATOIRES AU COURS D'UNE EXPÉRIENCE DE BILAN SUR LE RÉACTEUR AVEC CÔNE REFROIDI. (Cône 40°, poudre Al_2O_3 Grit 30).....	126
TABEAU 3.3	CONDITIONS OPÉRATOIRES AU COURS D'UNE EXPÉRIENCE DE BILAN SUR LE RÉACTEUR AVEC CÔNE NON REFROIDI. (Cône 40°, poudre Al_2O_3 Grit 30).....	128
TABEAU 3.4	PUISSANCES MESURÉES ET CALCULÉES À PARTIR DES DEUX BILANS ÉNERGÉTIQUES: CÔNE REFROIDI ET NON REFROIDI.....	130
TABEAU 3.5	RÉSUMÉ DE CALCUL DE Q_r AVEC LES VALEURS UTILISÉES ET COMPARAISON AVEC Q_r MESURÉS.....	130
TABEAU 3.6	RÉSUMÉ DE CALCUL DE Q_c AVEC LES VALEURS UTILISÉES ET COMPARAISON AVEC Q_c MESURÉS.....	131
TABEAU 3.7	RÉPARTITION DES PUISSANCES EN % DE P_{th}.....	132
TABEAU 3.8	POSITIONS DE MESURE ET TEMPÉRATURES MESURÉES EN RÉGIME PERMANENT AU COURS DE L'EXPÉRIENCE DE BILAN AVEC CÔNE NON REFROIDI.....	137

TABEAU 3.9	POSITIONS DE MESURE ET TEMPÉRATURES MESURÉES EN RÉGIME PERMANENT AU COURS DE L'EXPÉRIENCE DE BILAN AVEC CÔNE REFROIDI.....	139
TABEAU 3.10	CONDITIONS OPÉRATOIRES, TEMPÉRATURES ET EMBLACEMENT DES DIFFÉRENTS THERMOCOUPLES AU COURS DES EXPÉRIENCES OÙ LES PROFILS DE TEMPÉRATURE DANS LE LIT ONT ÉTÉ MESURÉS AVEC Al_2O_3 Grit30, DÉBIT DE GAZ Ar/N_2 (20%) 25 SLPM ET DIFFÉRENTS ANGLES DUCÔNE.....	141
TABEAU 3.11	ESTIMATION DE LA CONDUCTIVITÉ THERMIQUE ÉQUIVALENTE RADIALE DU LIT À PARTIR DE L'ÉQUATION 3.51 ET DES GRADIENTS MESURÉS DANS LE LIT.....	146
TABEAU 4.1	SOURCES ET CARACTÉRISTIQUES DE L'ATTRITION DANS LES LITS SOUFLÉS.....	154
TABEAU 4.2	RÉSUMÉ DES CONDITIONS OPÉRATOIRES ET DES RÉSULTATS AU COURS DES EXPÉRIENCES D'ÉTUDE DE L'ATTRITION.....	160
TABEAU 4.3	VARIATION DU DIAMÈTRE MOYEN DES POUDRES DANS LE RÉACTEUR ET TAUX DE FINES PRODUITS AU COURS DES EXPÉRIENCES D'ÉTUDE DE L'ATTRITION.....	165
TABEAU 4.4	CHANGEMENT DE FACTEUR DE FORME DE LA POUDRE DANS LE RÉACTEUR	168
TABEAU 5.1	DONNÉES THERMODYNAMIQUES POUR LE SYSTÈME CARBONE -CO_2- CO [WEN et Coll., 1979].....	176
TABEAU 5.2	TENDANCES À L'ÉQUILIBRE POUR LE SYSTÈME C-H-O [JONSON, 1979].....	179
TABEAU 5.3	RELATIONS ENTRE LE TEMPS NÉCESSAIRE À ACHEVER UN TAUX DE CONVERSION DONNÉ ET LE RAYON DE LA PARTICULE.....	185
TABEAU 5.4	VITESSES RELATIVES DES RÉACTIONS DE GAZÉIFICATION À $T = 800\text{ }^{\circ}C$ ET À $P = 0.1\text{ atm.}$ [WALKER et Coll., 1959].....	185

TABLEAU 5.5	ORDRE DE RÉACTION ET ÉNERGIE D'ACTIVATION MESURÉS PAR QUELQUES AUTEURS DANS DIFFÉRENTES CONDITIONS OPÉRATOIRES.....	188
TABLEAU 5.6	LES ÉLÉMENTS AYANT DES EFFETS CATALYTIQUES SUR LES DIFFÉRENTES RÉACTIONS DE GAZÉIFICATION.....	190
TABLEAU 5.7	CONDITIONS OPÉRATOIRES AU COURS DES EXPÉRIENCES DE GAZÉIFICATION.....	201
TABLEAU 5.8	DISTRIBUTION DU COKE ENTRE LES DIFFÉRENTS ÉLÉMENTS: RÉACTEUR, COLLECTEUR ET FILTRE EN FIN D'EXPÉRIENCES.....	202
TABLEAU 5.9	TAUX SPÉCIFIQUE DE GAZÉIFICATION MOYEN AU COURS DES EXPÉRIENCES.....	205
TABLEAU 5.10	DIAMÈTRES DE PARTICULE CRITIQUES POUR LES RÉGIMES DE CONTRÔLE EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE (d'après [TUKDOGAN et coll., 1968]).....	207
TABLEAU A1.1	HAUTEUR DU CÔNE POUR LES DIFFÉRENTS ANGLES DE CÔNE UTILISÉS.....	231
TABLEAU A3.1	ANALYSE RESTREINTE "PROXIMATE ANALYSIS" DU COKE DE PÉTROLE INITIAL.....	238
TABLEAU A3.2	ANALYSE DÉTAILLÉE "ULTIMATE ANALYSIS" DU COKE DE PÉTROLE INITIAL. (base: échantillon sec).....	238
TABLEAU A3.3	COMPOSITION DES CENDRES.....	238
TABLEAU A3.4	ANALYSE DES ÉCHANTILLONS ISSUS DES EXPÉRIENCES AVEC LE COKE GROSSIER.....	240
TABLEAU A3.5	ANALYSE DES ÉCHANTILLONS ISSUS DES EXPÉRIENCES AVEC LE COKE FIN.....	241
TABLEAU A4.1	DISTRIBUTION DU COKE ENTRE LES DIFFÉRENTS ÉLÉMENTS: RÉACTEUR, COLLECTEUR ET FILTRE EN FIN D'EXPÉRIENCES.....	245
TABLEAU A4.2	ATTRITION ET ÉLUTRIATION AU COURS DE LA GAZÉIFICATION DU COKE DE PÉTROLE DANS LE RÉACTEUR À LIT SOUFFLÉ PAR PLASMA.....	246

TABLEAU A4.3	TAILLE MOYENNE DES POUDRES RECUEILLIES DANS LE COLLECTEUR ET LE FILTRE AU COURS DES EXPÉRIENCES.....	249
TABLEAU A6.1	PICS DE MASSE ET GAZ CORRESPONDANTS DÉTECTÉS PAR L'MS À DIFFÉRENTS INSTANTS AU COURS DE L'EXPÉRIENCE C₃.	260
TABLEAU A6.2	DISTRIBUTION DU COKE ENTRE LES DIFFÉRENTS ÉLÉMENTS DU SYSTÈME: RÉACTEUR, COLLECTEUR ET FILTRE AU COURS DES EXPÉRIENCES AVEC LE COKE FIN.....	274
TABLEAU A10.1	RÉSUMÉ DES CONDITIONS THERMIQUES DES EXPÉRIENCES.....	290
TABLEAU A11.1	RÉSUMÉ DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES DES EXPÉRIENCES.....	292

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1	Différentes configurations pour le couplage d'un jet de plasma et d'un lit fluidisé ou soufflé.....	7
Figure 1.2	Diagramme de classification des particules selon leur aptitude à être fluidisées dans l'air, d'après Geldart [GELDART, 1973].....	9
Figure 1.3	Effet de la température et du diamètre des particules sur la vitesse minimale de soufflage U_{ms} , d'après [YE et coll., 1992].....	11
Figure 1.4	Effet de la température sur H_m . Résultats expérimentaux de YE (o) comparés à la corrélation de McNab (équation 1.3 en traits plein), d'après [YE et coll., 1992].....	13
Figure 1.5	Isothermes dans le lit soufflé par plasma. (a) calcul, (b) mesures. [FLAMANT, 1990].....	18
Figure 2.1	Description du lit soufflé par une torche à plasma DC.....	24
Figure 2.2	Schéma et dimensions de la colonne de Pyrex.....	25
Figure 2.3	Schéma détaillé de la torche à plasma DC.....	26
Figure 2.4	Photo de l'aspect du lit observé au cours de l'expérience décrite dans le tableau 2.2.....	28
Figure 2.5	Évolution des températures au cours de l'expérience décrite dans le tableau 2.3.....	29
Figure 2.6	Schéma du montage à colonne de quartz.....	31
Figure 2.7	Aspect du lit au cours de l'expérience décrite au tableau 2.4.....	33
Figure 2.8	Profils de température mesurée dans le lit au cours de l'expérience décrite au tableau 2.4.....	33
Figure 2.9	Évolution de l'aspect du lit au cours de l'expérience décrite au tableau 2.5.....	35
Figure 2.10	Profils de température mesurée dans le lit au cours de l'expérience décrite au tableau 2.5.....	35

Figure 2.11	Rectification de la conicité de la base. a : géométrie actuelle. b: changement de géométrie proposé.....	36
Figure 2.12	configuration de la base du réacteur avec le cône de graphite 20°. Les positions des thermocouples sont indiquées.....	37
Figure 2.13	Évolution de la perte de charge à travers le lit en fonction de la charge du solide dans le réacteur (exprimée en hauteur de lit) pour les expériences 1 et 2.....	39
Figure 2.14	Évolution de la perte de charge à travers le lit en fonction de la charge du solide dans le réacteur (exprimée en hauteur de lit) pour les expériences 3 et 4.....	39
Figure 2.15	Aspect du lit observé au cours des expériences avec Al_2O_3 Grit 30.	40
Figure 2.16	Profils de température mesurée dans le lit au cours de l'expérience 4. La position des thermocouples est donnée en figure 2.12	41
Figure 2.17	Schéma montrant la position et la forme du morceau de poudre fusionnée obtenu au cours des expériences avec Al_2O_3 Grit 60.....	42
Figure 2.18	Schéma de l'installation utilisée pour l'étude de l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma DC.....	43
Figure 2.19	Diagramme des régimes du lit soufflé.....	49
Figure 2.20	Modes d'opération possibles pour la détermination du point de transition: lit fixe - lit soufflé.....	51
Figure 2.21	Évolution de l'aspect du lit observé pendant l'augmentation graduelle de la charge solide pour les catégories de poudre Al_2O_3 Grit 30, Grit 24, Grit 20 et Grit 12.....	53
Figure 2.22	Régime de lit soufflé cohérent avec une fontaine bien définie. Al_2O_3 Grit 30.....	54
Figure 2.23	Régime de lit soufflé cohérent avec une fontaine bien définie. Al_2O_3 Grit 24.....	54
Figure 2.24	Régime de lit soufflé cohérent avec une fontaine bien définie. Al_2O_3 Grit 20.....	55
Figure 2.25	Régime de lit soufflé cohérent. Al_2O_3 Grit 12. (a) aspect en début de charge. (b) fontaine au dessus du lit.....	55
Figure 2.26	Instabilités dans le régime de lit soufflé pour les particules fines Al_2O_3 Grit 46 et Grit 60.....	57

Figure 2.27	Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30 ($d_p = 0.74$ mm) et angle du cône 60°	58
Figure 2.28	Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30 ($d_p = 0.74$ mm) et angle du cône 40°	59
Figure 2.29	Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 24 ($d_p = 0.84$ mm) et angle du cône 60°	59
Figure 2.30	Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 24 ($d_p = 0.84$ mm) et angle du cône 40°	60
Figure 2.31	Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 20 ($d_p = 0.98$ mm) et angle du cône 60°	60
Figure 2.32	Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 20 ($d_p = 0.98$ mm) et angle du cône 40°	61
Figure 2.33	Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 12 ($d_p = 1.64$ mm) et angle du cône 60°	61
Figure 2.34	Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 12 ($d_p = 1.64$ mm) et angle du cône 40°	62
Figure 2.35	Comparaison entre les données expérimentales et celles calculées à partir de l'équation (2.17).....	72
Figure 2.36	Distribution des écarts relatifs entre les valeurs de Re_{pms} mesurées et celles calculées à partir de l'équation 2.17 en fonction du N° des expériences.....	72
Figure 2.37	Comparaison entre les données expérimentales et celles calculées à partir de l'équation(2.18).....	74
Figure 2.38	Distribution des écarts relatifs entre les valeurs de $\frac{H}{d_p}$ mesurées et celles calculées à partir de l'équation 2.18 en fonction du N° des expériences.....	74

Figure 2.39	Courbes de transition lit fixe - lit soufflé pour les différentes catégories de poudre et pour l'angle de cône 40°. Les traits pleins représentent les valeurs calculées et les symboles les valeurs mesurées. Le trait en pointillé délimite la hauteur du cône (182.7 mm).....	76
Figure 2.40	Courbes de transition lit fixe - lit soufflé pour les différentes catégories de poudre et pour l'angle de cône 60°. Les traits pleins représentent les valeurs calculées et les symboles les valeurs mesurées. Le trait en pointillé délimite la hauteur du cône (115.2 mm).....	77
Figure 2.41	Évolution de la hauteur maximale de lit maintenue à l'état soufflé pour un débit de gaz et un courant fixé ($I = 274 \pm 5$ A). Cas de l'angle de cône 40°.....	79
Figure 2.42	Évolution de la hauteur maximale de lit maintenue à l'état soufflé pour un débit de gaz et un courant fixé ($I = 274 \pm 5$ A). Cas de l'angle de cône 60°.....	80
Figure 2.43	Évolution de la hauteur de charge maximale H , ainsi que de la masse correspondante m , en fonction de la taille de particules d_p pour les deux angles de cône 40° et 60° pour le débit de gaz 20 SLPM. : $m = f(d_p)$, ____ : $H = f(d_p)$	83
Figure 2.44	Évolution de la vitesse minimale de soufflage U_{ms}^0 en fonction de la hauteur du lit pour les différentes catégories de poudre. Cas du cône d'angle 40°.....	85
Figure 2.45	Évolution de la vitesse minimale de soufflage U_{ms}^0 en fonction de la hauteur du lit pour les différentes catégories de poudre. Cas du cône d'angle 60°.....	86
Figure 3.1	Schéma de répartition de l'énergie électrique.....	98
Figure 3.2	Caractéristiques tension-courant pour différents débits d'argon.....	100
Figure 3.3	Caractéristiques courant - tension pour un mélange Ar/N ₂ à 20% N ₂ et un débit de gaz de 20 SLPM.....	101
Figure 3.4	Influence du % N ₂ dans un mélange Ar/N ₂ sur la tension d'arc pour un courant d'arc fixé à 274 ± 4 A et un débit total de 20 SLPM.....	102
Figure 3.5	Influence du % N ₂ dans un mélange Ar/N ₂ sur la puissance électrique dissipée dans la torche pour un courant d'arc fixé à 274 ± 4 A et un débit total de 20 SLPM.....	102
Figure 3.6	Variation du rendement énergétique de la torche en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A.	103

Figure 3.7	Variation de la puissance disponible dans le jet en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A.....	104
Figure 3.8	Variation du rendement énergétique de la torche en fonction du débit de gaz pour un mélange Ar/N ₂ à 20 % N ₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A.....	105
Figure 3.9	Variation de la puissance disponible dans le jet en fonction du débit de gaz pour un mélange Ar/N ₂ à 20 % N ₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A.....	105
Figure 3.10	Variation de l'enthalpie spécifique du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A.....	106
Figure 3.11	Variation de la température enthalpique du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A.....	106
Figure 3.12	Variation de la vitesse moyenne du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A.....	107
Figure 3.13	Variation de l'enthalpie spécifique du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour un mélange Ar/N ₂ à 20% N ₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A.....	108
Figure 3.14	Variation de la température enthalpique du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour un mélange Ar/N ₂ à 20% N ₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A.....	109
Figure 3.15	Variation de la vitesse moyenne du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour un mélange Ar/N ₂ à 20% N ₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A.....	109
Figure 3.16	Fluctuations mesurées au cours d'une expérience menée avec Al ₂ O ₃ Grit 30, débit Ar/N ₂ (20%N ₂) 25 SLPM: (a) courant, (b) tension, (c) puissance, (d) rendement de la torche.....	111
Figure 3.17	Fluctuations des grandeurs moyennes à la sortie de l'anode au cours d'une expérience menée avec Al ₂ O ₃ Grit 30, débit Ar/N ₂ (20%N ₂) 25 SLPM: (a) puissance disponible dans le jet, (b) enthalpie spécifique moyenne, (c) température enthalpique moyenne, (d) vitesse moyenne du jet.....	112
Figure 3.18	Bilan énergétique sur le gaz pour une tranche dz.....	115
Figure 3.19	Illustration du bilan sur le solide.....	117

Figure 3.20	Schéma électrique des pertes thermiques dans la partie occupée par le lit.....	118
Figure 3.21	Évolution théorique de la température du lit en fonction du temps dans le cas non adiabatique d'après l'équation 3.35 pour les conditions opératoires au minimum de soufflage avec la catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30. 1: 15 SLPM, 2: 20 SLPM, 3: 25 SLPM, 4: 30 SLPM.....	122
Figure 3.22	Évolution théorique de la température du lit en fonction du temps dans le cas adiabatique d'après l'équation 3.38 pour les conditions opératoires au minimum de soufflage avec la catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30. 1: 15 SLPM, 2: 20 SLPM, 3: 25 SLPM, 4: 30 SLPM. (--- représente le point de fusion de l'alumine).....	122
Figure 3.23	Schéma du circuit de refroidissement du réacteur.....	124
Figure 3.24	Évolution des puissances P_c et P_h au cours de l'expérience de bilan énergétique sur le réacteur avec cône refroidi. (les conditions opératoires sont rapportées dans le tableau 3.2).....	127
Figure 3.25	Évolution des puissances Q_c , Q_{34} et Q_{res} au cours de l'expérience de bilan énergétique sur le réacteur avec cône refroidi.....	127
Figure 3.26	Évolution des puissances P_c et P_h au cours de l'expérience de bilan énergétique sur le réacteur avec cône non refroidi. (les conditions opératoires sont rapportées dans le tableau 3.3).....	129
Figure 3.27	Évolution des puissances Q_{12} , Q_{34} et Q_{res} au cours de l'expérience de bilan énergétique sur le réacteur avec cône non refroidi.....	129
Figure 3.28 a:	Système de positionnement et de repérage de la sonde.	
b:	détermination de la position radiale $r = \sqrt{r_2^2 + r_1^2 - 2r_1r_2 \cos \beta}$	134
Figure 3.29	Positions de mesure de la température dans le lit.....	135
Figure 3.30	Température mesurée par la sonde en différentes positions du lit au cours de l'expérience de bilan avec cône non refroidi.....	136
Figure 3.31	Température mesurée par la sonde en différentes positions du lit au cours de l'expérience de bilan avec cône refroidi.....	138
Figure 3.32	Profils de température dans le lit: (a) cône 20°, (b) cône 40°, (c) cône 60°, (d) cône 60° à base non conique. Les détails des conditions opératoires et les coordonnées des points de mesure des différentes températures sont donnés au tableau 3.10.....	142

Figure 3.33	Champs de vitesse des particules dans le lit soufflé d'après [KRZYWANSKI et Coll., 1992].....	144
Figure 3.34	Gradients de température dans le lit soufflé d'après [MALEK et Coll., 1964]....	145
Figure 4.1	Distribution de taille dans les poudres initiales. (a) Grit 60, (b) Grit 30.....	157
Figure 4.2	Photo de grains de Al_2O_3 Grit 60 obtenue à l'aide du microscope électronique à balayage (MEB).....	158
Figure 4.3	Photo montrant les détails de la surface d'un grain de Al_2O_3 Grit 60 avec présences de multiples fissures. Photo obtenue au MEB.....	158
Figure 4.4	Photo de la coupe d'un grain de Al_2O_3 Grit 60 obtenue au MEB en mode rétro diffusé. Présence d'inhomogénéité dans le grain (en blanc).....	158
Figure 4.5	Effet de la durée de traitement sur la distribution de taille des poudres récupérées dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 30, expériences 1, 2, 3 tableau 4.2.....	161
Figure 4.6	Effet de la durée de traitement sur la distribution de taille des poudres récupérées dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 60, expériences 5, 6, 7 tableau 4.2.....	162
Figure 4.7	Effet de la puissance d'opération de la torche sur la distribution de taille des poudres récupérées dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 30, expériences 1 et 4, tableau 4.2.....	163
Figure 4.8	Effet de la puissance d'opération de la torche sur la distribution de taille des poudres récupérées dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 60, expériences 5, 6 et 8, tableau 4.2.....	163
Figure 4.9	Distribution de taille des poudres avant et après traitement dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 30, initiale et après expérience 4 (tableau 4.2).....	167
Figure 4.10	Distribution de taille des poudres avant et après traitement dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 60, initiale et après expérience 8 (tableau 4.2).....	167
Figure 4.11	Distribution de taille des poudres éluées au cours de l'expérience 4 (tableau 4.2).....	170
Figure 5.1	$\log_{10}(K) = f(T)$ pour le système graphite- dioxyde de carbone.....	176
Figure 5.2	Caractéristiques d'équilibre du système C (graphite)-CO-CO ₂ d'après [JOHNSON, 1979].....	177

Figure 5.3	Caractéristiques d'équilibre du système C-H-O ($H/O = 1$ g-atome/g-atome) d'après [JOHNSON, 1979].....	178
Figure 5.4	Évolution du profil de concentration du carbone dans la particule dans les deux cas: réaction de volume et réaction de surface d'après [WEN et Coll., 1979]...	181
Figure 5.5	Diagramme d'Arrhénius montrant les trois zones de contrôle en fonction de la température d'après [WALKER, 1959].....	183
Figure 5.6	Schéma global du montage d'étude de la gazéification du coke par CO_2	192
Figure 5.7	Photo du réacteur.....	193
Figure 5.8	Schéma du réacteur.....	194
Figure 5.9	Détails de la base conique du réacteur (a) coupe longitudinale. (b) dimensions	195
Figure 5.10	Positions axiales et radiales des thermocouples utilisés pour la mesure de la température dans le lit.....	197
Figure A1.1	Définition des grandeurs géométriques utilisées dans le calcul de la hauteur du lit.....	230
Figure A4.1	Distribution de taille dans les deux catégories de poudre de coke de pétrole utilisées. (a) coke grossier, (b) coke fin.....	243
Figure A4.2	Distribution de taille des particules dans le réacteur avant et après l'expérience C_4	247
Figure A4.3	Distribution de taille des particules dans le réacteur avant et après l'expérience C_6	248
Figure A4.4	Évolution de la masse de poudre éluutriée et du taux d'attrition au cours de l'expérience C_2	250
Figure A6.1	Fractions molaires des différents gaz mesurées par l'MS dans l'effluent gazeux à la sortie du réacteur au cours de l'expérience C_1	255
Figure A6.2	Agrandissement de la figure A6.1 dans la zone $t_1 - t_2$	257
Figure A6.3	Évolution du taux de consommation du carbone F_c (F_{c1} et F_{c2}) au cours de l'expérience C_1 . Les temps indiqués (t_2 à t_5) sont les même que ceux précisés ci-avant	258

Figure A6.4	(a) Évolution de T_1 , T_2 et T_3 au cours de l'expérience C_3 . (b) Évolution de la température moyenne T_m au cours de l'expérience C_3	261
Figure A6.5	Fractions molaires des différents gaz mesurées par l'MS dans l'effluent gazeux à la sortie du réacteur au cours de l'expérience C_4	263
Figure A6.6	Évolution du taux de consommation du carbone durant l'expérience C_4 . F_c (g/s) (F_{c1} et F_{c2}).....	264
Figure A6.7	Évolution des températures mesurées dans le lit au cours de l'expérience C_4 . Les temps indiqués (t_1 à t_4) sont les mêmes que pour la figure A6.6.....	265
Figure A6.8	Évolution du taux de consommation de carbone F_c et de la température moyenne du lit T_m au cours de l'expérience C_4 . Les temps indiqués (t_2 à t_4) sont les mêmes que pour la figure A6.6.....	266
Figure A6.9	Fractions molaires des différents gaz mesurées par l'MS dans l'effluent gazeux à la sortie du réacteur au cours de l'expérience C_5	267
Figure A6.10	Évolution de la fraction molaire d'hydrogène dégagée et de la température moyenne du lit T_m au cours de l'expérience C_5	268
Figure A6.11	Fractions molaires des différents gaz mesurées par l'MS dans l'effluent gazeux à la sortie du réacteur au cours de l'expérience C_6	269
Figure A6.12	Évolution du taux de consommation du carbone durant l'expérience C_6 . F_c (g/s) (F_{c1} et F_{c2}).....	270
Figure A6.13	Évolution des températures mesurées dans le lit au cours de l'expérience C_6	271
Figure A6.14	Évolution du taux de consommation de carbone F_c et de la température moyenne du lit T_m au cours de l'expérience C_6 . Les temps indiqués (t_2 à t_4) sont les mêmes que pour la figure A6.12.....	272
Figure A6.15	Évolution du taux de dégagement de H_2 (F_{H2}) et de la température moyenne du lit T_m au cours de l'expérience C_6 . Les temps indiqués (t_2 à t_4) sont les mêmes que pour la figure A6.12.....	273
Figure A6.16	Évolution du taux de consommation du carbone (F_{c1} et F_{c2}) ainsi que de la température T_1 au cours de l'expérience C_7	275
Figure A6.17	Évolution du taux de consommation du carbone (F_{c2}) ainsi que de la température T_1 au cours de l'expérience C_8	276

Figure A6.18 Évolution du taux de consommation du carbone (F_{C_1} et F_{C_2}) ainsi que de la température T_1 au cours de l'expérience C_9	277
Figure A6.19 Évolution du taux de consommation du carbone (F_{C_1} et F_{C_2}) ainsi que de la température T_1 au cours de l'expérience C_{10}	278
Figure A7.1 Surface spécifique mesurée dans les échantillons et surface spécifique calculée en considérant la structure en onion montrée dans le schéma.....	281
Figure A8.1 $\ln(-R_A)$ en fonction de $\ln(C_{A0})$ pour la détermination de l'ordre de la réaction C-CO ₂	284
Figure A9.1 Composition à l'équilibre, à différentes températures, du mélange de composition molaire à 298K: 50% Ar, 25% He et 25% CO ₂ . Pression totale 1 atm.....	285
Figure A9.2 Composition d'équilibre, à différentes températures et à $P = 1$ atm, de la phase gazeuse du système: coke + Ar + He + CO ₂ . Composition molaire du gaz à l'entrée (50% Ar, 25% He, 25% CO ₂).....	287
Figure A10.1 Variation de l'enthalpie spécifique en fonction de la température d'un mélange de gaz de composition molaire à 298K: 50% Ar, 25% He, 25% CO ₂	288

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Les réacteurs plasma destinés au traitement de particules sont généralement basés sur la dispersion du solide en phase diluée dans le jet de gaz ionisé. Dans ces conditions, le temps de séjour des particules dans le plasma est faible (de l'ordre de quelques centièmes de seconde) et ne permet que la réalisation de traitements thermiques rapides. De plus la densité volumique de solide traité dans ce cas est faible. Ce genre de réacteur est utilisé pour les opérations de sphéroïdisation, synthèse des ultra fines et dépôts réfractaires. Lorsqu'il s'agit de traitement de solide en phase dense, ce type de réacteur n'est pas adapté.

Afin de palier à ce défaut, le couplage des avantages multiples des lits fluidisés et du plasma semble être la solution adéquate pour le développement d'une nouvelle génération de réacteurs chimiques.

Le couplage des deux systèmes fournit beaucoup d'opportunités:

- Réactions en phase gazeuse (dans le plasma) combinées avec la trempe (en lit fluidisé).
- Traitement du solide à haute température dans des réacteurs de petite taille (densité de puissance élevée dans le plasma et densité de particules élevée dans le lit).
- Revêtement de particules et traitement de surface par des réactions solide/gaz.

Le développement des réacteurs à lits fluidisés ou soufflés par plasma est actuellement limité par le manque de connaissance des caractéristiques de base de ces réacteurs et par des problèmes techniques rapportés par les pionniers dans ce domaine tels l'agglomération, l'attrition et l'élutriation du solide. Le réacteur à lit soufflé par plasma offre les avantages spécifiques suivants:

- Le jet de plasma est confiné dans le lit de solide ce qui permet de limiter les pertes thermiques par rayonnement et convection.
- L'efficacité d'échange plasma - particules est élevée.
- La densité de puissance par unité de volume du réacteur est élevée. Ce qui permet la réalisation d'unités compactes.

- La recirculation vigoureuse du solide continuellement entraîné par le jet permet de réaliser des traitements nécessitant des temps de séjour importants.
- Le réacteur s'adapte facilement à un fonctionnement continu.
- L'apport d'énergie électrique est facilement contrôlable par variation du courant de la décharge.

Bien que le lit soufflé soit connu depuis 1954, il n'existe pas encore de théorie unifiée et suffisante pour prédire le comportement hydrodynamique de ce réacteur. La littérature est riche en corrélations empiriques et semi-empiriques pour la prédiction des principales caractéristiques hydrodynamiques telles que la vitesse minimale de soufflage et la hauteur maximale de soufflage. Ces corrélations ne sont valables en général que dans la plage de paramètres testés, de plus les rares études qui se sont intéressées à l'influence de la température sur l'hydrodynamique du lit soufflé ont démontré que les corrélations établies à basses températures prédisent mal le comportement du réacteur à haute température.

La première application des lits soufflés par plasma relatée dans la littérature date de 1971. Cependant, rares sont les auteurs qui ont mentionné ou décrit le principe de fonctionnement d'un tel réacteur. Le réacteur à lit soufflé par plasma comparativement au lit soufflé standard est caractérisé par des vitesses de jet et des températures élevées à l'entrée du lit ce qui doit lui conférer un comportement distinct. Les études qui se sont intéressées à l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma sont très réduites. Les paramètres opératoires importants sont mal connus et une seule corrélation pour la vitesse minimale de soufflage a été établie avant le présent travail par Bamrim et Flamant [BAMRIM et coll., 1992].

L'objectif final de cette étude est la réalisation d'un réacteur chimique à lit soufflé par plasma dans lequel certaines opérations telles que: traitement de minerai, gazéification et traitement de déchets solide pourraient être envisagées. Devant l'absence de tout critère de conception et de dimensionnement d'un tel réacteur et après les problèmes techniques rencontrés dus à la méconnaissance du mode de fonctionnement de ce réacteur et des paramètres qui contrôlent son hydrodynamique, il est apparu nécessaire de mener une étude de caractérisation afin de mieux comprendre les phénomènes impliqués et de voir les possibilités et les limites de ce type de réacteur. La caractérisation comprend l'étude de l'hydrodynamique, du transfert de chaleur et de

l'attrition dans le réacteur. À la dernière phase du projet, la gazéification du coke de pétrole par CO_2 a été explorée comme réaction solide/gaz.

Le document comprend 5 chapitres.

- La synthèse bibliographique du *chapitre 1* résume l'état de connaissance et les applications qui ont été étudiées dans les réacteurs à lits fluidisés par plasma en général et le réacteur à lit soufflé par plasma en particulier. Les études antérieures qui se rapportent à l'hydrodynamique, au transfert de chaleur et à l'attrition dans le lit soufflé par plasma sont rapportées.

- *Le chapitre 2* est consacré à l'étude de l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma. Les étapes du développement du montage et de la méthodologie adoptée pour l'étude paramétrique de l'hydrodynamique sont décrites. Les résultats se rapportent aux observations du comportement hydrodynamique ainsi qu'à la détermination du point de transition lit fixe - lit soufflé en fonction des paramètres géométriques de conception du réacteur, des caractéristiques du solide et du gaz et des conditions d'opération du réacteur.

- *le chapitre 3* concerne le transfert de chaleur dans le réacteur. Les mécanismes de transfert de chaleur sont analysés et des bilans énergétiques sont menés sur la torche, le réacteur et le solide granuleux. Un modèle global pour le transfert d'énergie dans le réacteur est établi. Ce modèle global permet l'estimation de la température moyenne du lit tenant compte des conditions d'opération et des pertes thermiques du réacteur.

- *Le chapitre 4* est consacré à l'étude de l'attrition et de l'élutriation dans le réacteur. Les résultats se rapportent aux taux de fines produits, au taux d'élutriation, à la diminution relative du diamètre moyen des particules et au changement de leur forme en fonction des conditions d'opération.

- Dans *le chapitre 5*, le montage final du réacteur pour l'étude des applications potentielles est décrit. L'application choisie est la gazéification du coke de pétrole par le dioxyde du carbone. Les résultats de l'étude de la gazéification du coke de pétrole en fonction de la taille des particules et des conditions d'opération du réacteur sont rapportés. Les performances du réacteur en termes de taux de gazéification spécifique sont analysés et commentés.

CHAPITRE 1

1. ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE

1.1. Introduction

Les réacteurs plasma destinés au traitement de particules sont généralement basés sur la dispersion du solide en phase diluée dans le jet de gaz ionisé. Dans ces conditions, le temps de séjour des particules dans le plasma est faible (de l'ordre de quelques centièmes de seconde) et ne permet que la réalisation de traitements thermiques rapides. De plus la densité volumique de solide traité dans ce cas est faible. Ce genre de réacteur est utilisé pour les opérations de sphéroïdisation, synthèse des ultra fines et dépôts réfractaires. Une revue complète de ces applications est donnée par Boulos [BOULOS, 1991], [BOULOS, 1992] et [BOULOS, 1996]. Lorsqu'il s'agit de traitement de solide en phase dense, ce type de réacteur n'est pas adapté.

Afin de palier à ce défaut, le couplage des avantages multiples des lits fluidisés et du plasma semble être la solution adéquate pour le développement d'une nouvelle génération de réacteurs chimiques.

Les lits fluidisés et les lits soufflés sont caractérisés par un mixage parfait des particules (gradients thermiques faibles, diffusivité thermique élevée), taux de transfert de chaleur et de masse élevés, opération continue avec le solide, densité apparente du solide élevée. Les écoulements plasma sont composés d'espèces chimiques très réactives (ions, radicaux libres) et peuvent fournir des sources de température élevée pour le chauffage du solide. Le couplage des deux systèmes fournit beaucoup d'opportunités:

- Réactions en phase gazeuse (dans le plasma) combinées avec la trempe (en lit fluidisé).
- Traitement du solide à haute température dans des réacteurs de petite taille (densité de puissance élevée dans le plasma et densité de particules élevée dans le lit).
- Revêtement de particules et traitement de surface par des réactions solide/gaz.

Tous ces développements sont actuellement limités par la méconnaissance des propriétés des lits fluidisés par plasma (LFP) et des lits soufflés par plasma (LSP) ainsi que par quelques problèmes techniques tels que l'agglomération des particules observée par les pionniers dans ce domaine.

1.2 Lits soufflés/fluidisés par plasma

La première application des lits fluidisés par plasma a été proposée en 1963 par Goldberger [GOLDBERGER et coll., 1963], pour la trempe par un lit fluidisé des espèces réactionnelles générées dans un plasma d'arc. Des taux de trempe supérieurs à 10^6 K/s ont été déterminés à partir des mesures de distribution de température.

La première application des lits soufflés par plasma relatée dans la littérature date de 1971 [BAL et coll., 1971]. Les auteurs rapportent des résultats de pyrolyse du charbon dans un lit soufflé par plasma d'arc d'argon et d'hydrogène mais ne donnent aucune information sur le principe d'opération ni sur les caractéristiques de ce type de réacteur. Jurewicz [JUREWICZ et coll., 1985], est le premier à décrire ce type de réacteur et à s'intéresser aux différents phénomènes caractéristiques: stabilité, profils de température dans le lit et attrition du solide.

Dans une revue des réalisations et études faites dans des réacteurs à lit fluidisés et lit soufflés par plasma jusqu' en 1994 [FLAMANT, 1994], les différentes applications sont classées en trois catégories:

- Pyrolyse d'hydrocarbures.
- Traitement de minerais.
- Élaboration des matériaux.

La dernière catégorie d'application est la plus récente. Un tableau récapitulatif issu de la même référence est rapporté ci après, Tableau 1.1.

TABLEAU 1.1 CHAMPS D'APPLICATION DES LITS FLUIDISÉS PAR PLASMA (LFP) ET DES LITS SOUFLÉS PAR PLASMA (LSP)

Type d'application	Source plasma	Type de réacteur	Entrée/Sortie	Référence	Configuration utilisée dans la figure 1.1
Pyrolyse des hydrocarbures	RF, Argon	LFP	CH ₄ /C ₂ H ₂	AMOUROUX et coll. 1968	(2)-a
	DC, Ar/H ₂	LSP	charbon/C _n H _m	BAL et coll. 1971	.(3)
	RF, Ar/H ₂	LFP	C ₁₆ H ₃₄ /C _n H _m	NIKRAVECH et coll. 1990	(2)-b
			nHexadecane/C _n H _m	PERNIN et coll. 1992	(2)-b
Traitement de minerais	DC, Ar	LFP	Ca ₃ (PO ₄) ₂ /P ₄	GOLDBERGER 1965	(1)-b
	3 AC, N ₂ /O ₂	LFP	ZrO ₂ /ZrO ₂ sphères	BONET et coll. 1973	(1)-c
	RF, Ar, N ₂ , N ₂ /H ₂	LFP	CaCO ₃ /CaO	ARNOULD et coll. 1987	(2)-b
	DC, Ar/N ₂	LFP	V ₂ O ₅ + Na ₂ CO ₃ /Na ₂ VO ₃	MUNZ et coll. 1990	(1)-a
	DC, Ar	LSP	CaCO ₃ /CaO	FLAMANT et coll. 1990b	.(3)
			traitement de poussières de Pb	FLAMANT et coll. 1992	.(3)
Élaboration des matériaux	RF, Ar/O ₂	LFP	traitement de surface des fibres de carbone	KAWAMURA et coll. 1990	(2)-c
	RF, N ₂	LFP	Nitration de Ti	OKUBO et coll. 1990	(2)-c
	DC, Ar	LSP	enrobage de carbone par CH ₄	KOJIMA et coll. 1991	.(3)
	micro onde, air	LFP	granulation pharmaceutique et séchage	DOELLING et coll. 1992	(2)-c

Les différentes configurations possibles pour coupler un jet de plasma avec un lit fluidisé ou soufflé sont décrites en figure 1.1.

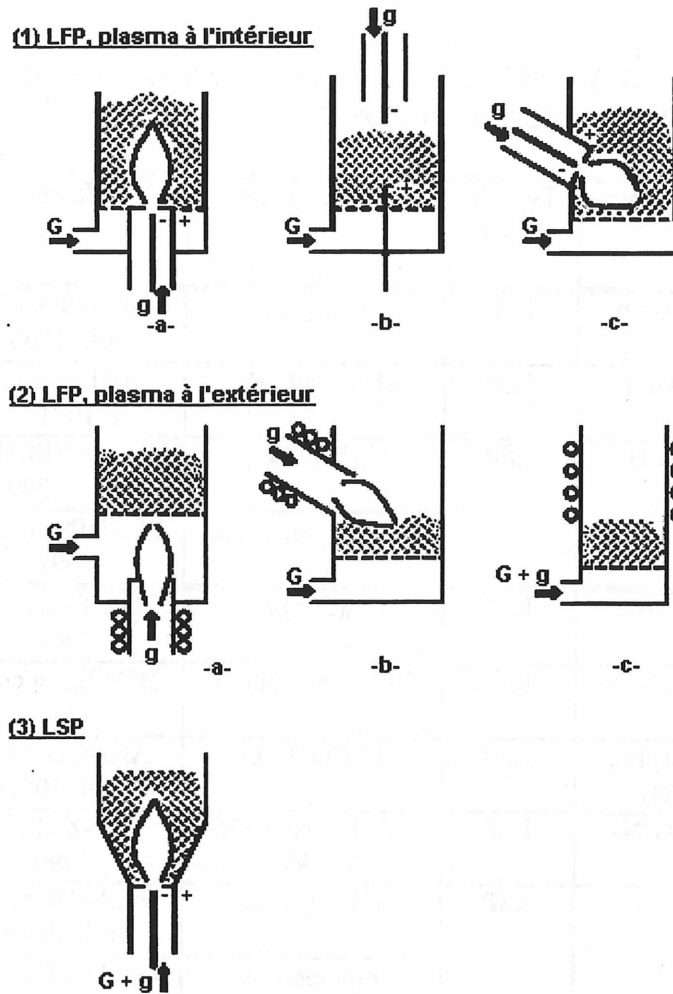


Figure 1.1 Différentes configurations pour le couplage d'un jet de plasma et d'un lit fluidisé ou soufflé.

Concernant les types de générateur plasma, les torches à arc DC, les torches à plasma induit RF ainsi que les systèmes à micro onde ont été utilisés. Les torches à arc DC sont le plus souvent associées au traitement de minerai à haute température alors que les générateurs RF sont surtout utilisés pour la synthèse de gaz et autres matériaux.

La configuration LFP a été utilisée plus fréquemment que la configuration LSP à cause de l'avantage qu'offre le LFP en allouant un degré de liberté additionnel pour l'opération et le contrôle par le gaz de fluidisation.

Pour le cas des lits fluidisés par plasma, le jet de plasma peut être immergé dans le lit ou localisé en dehors du lit. Dans le lit soufflé par plasma, le jet de plasma est immergé au centre du lit et joue un rôle essentiel dans la dynamique du réacteur.

Plus récemment, utilisant la configuration 2.b (figure 1.1), Leuenberger [LEUENBERGER et coll., 1995] rapporte qu'il a obtenu un taux de conversion de 85% lors de l'hydropyrolyse catalytique d'un hydrocarbure (n-Hexadécane) par trempe d'un plasma Ar/H₂, produit par une torche RF, dans le lit de catalyseur (alumine, zéolithe, mordenite) maintenu à l'état soufflé par un jet d'argon. L'hydrocarbure est injecté de façon continue au milieu du lit.

La production de carbure de calcium par réaction solide/solide: $CaO + 3C = CaC_2 + CO$ a été étudiée par El-Naas [EL-NAAS, 1996] dans un réacteur à lit soufflé-fluidisé (configuration 1.a de la figure 1.1). Le jet de plasma Ar/H₂, produit par une torche DC, sert à fluidiser le lit de particules (oxyde de calcium, carbone) et à fournir l'énergie nécessaire à la réaction. Comme source de carbone, il a utilisé le graphite, le coke et le méthane. Il conclut que la réaction a lieu principalement dans la zone de jet et que le taux de conversion augmente linéairement au cours du temps. Il note aussi que l'utilisation du méthane comme source de carbone améliore la conversion.

Le réacteur à lit soufflé-fluidisé (configuration 1.a de la figure 1.1) a aussi été utilisé par Tsukada [TSUKADA et coll., 1995] pour la production de grains d'alliage Fe-Al (granulation) à partir d'une poudre mélange des deux métaux. Le plasma d'argon est produit par une torche DC et l'argon est aussi utilisé comme gaz secondaire pour la fluidisation de la poudre. À partir d'un mélange de poudre de fer (149-210 µm) et d'aluminium (125-149 µm), des grains d'alliage de 1 à 5 mm ont été obtenus dans ce procédé au cours de quelques minutes d'opération. Les grains ont

un facteur de sphéricité de 0.85 et présentent une structure poreuse en surface et une structure plus dense vers le centre.

1.3. Hydrodynamique du lit soufflé

Historiquement, la technique du lit soufflé a été mise au point par Mathur et Ghisler en 1954 au Centre National de Recherche du Canada [GISHLER et coll., 1957]. Cette technique a été inventée comme variante du lit fluidisé pour répondre au besoin de traitement de particules de diamètre supérieur au millimètre ou plus précisément aux particules de type D dans la classification de Geldart [GELDART, 1973] (voire figure 1.2).

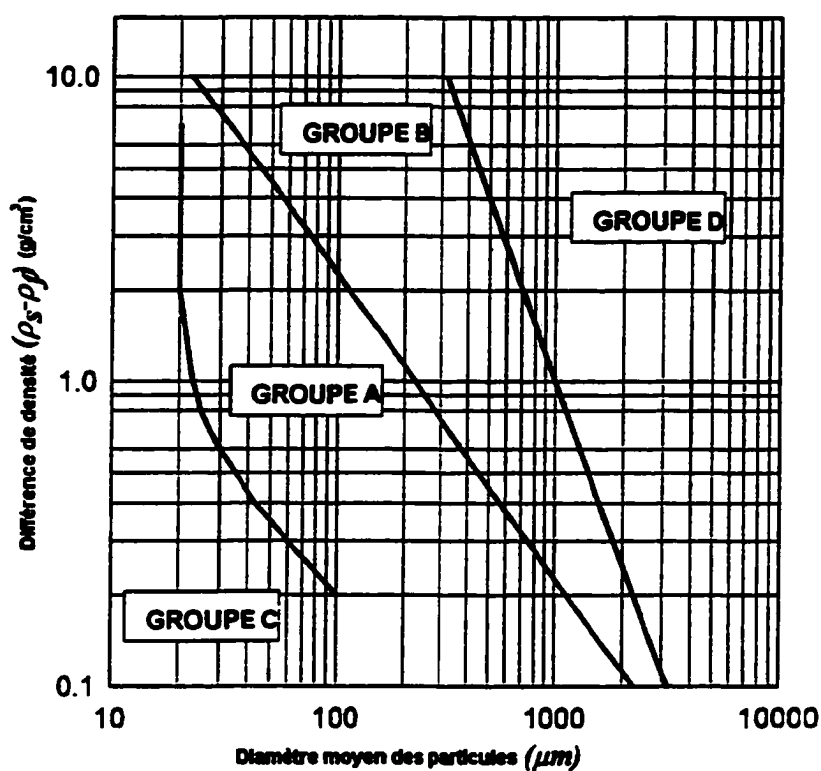


Figure 1.2 Diagramme de classification des particules selon leur aptitude à être fluidisées dans l'air, d'après Geldart [GELDART, 1973].

En effet, certaines difficultés sont rencontrées lors de la fluidisation de ce type de particules. Notamment, l'efficacité de contact solide/gaz est très réduite par les courts circuits de

gaz provoqués par les grandes bulles qui se forment dans le lit lors de la fluidisation de grosses particules ($d_p \geq 1\text{ mm}$) [DAVIDSON et coll., 1985].

Les deux techniques: lit fluidisé et lit soufflé sont donc à priori complémentaires, cependant l'hydrodynamique du lit soufflé est plus complexe.

1.3.1 Lit soufflé standard

L'hydrodynamique du lit soufflé standard (sans plasma) est bien décrite par Epstein dans [EPSTEIN et coll., 1974]. Cette référence résume tous les travaux antérieurs à 1974 concernant ce type de réacteur. Par la suite, d'autres revues ont été publiées: [EPSTEIN et coll., 1984] et [BRIDGWATER, 1985].

En l'absence d'une théorie unifiée et suffisante pour prédire le comportement hydrodynamique du lit soufflé, la littérature continue de s'enrichir de corrélations empiriques et semi-empiriques pour la prédiction des principales caractéristiques hydrodynamiques: vitesse minimale de soufflage, hauteur maximale de soufflage, diagramme des régimes...([DAY, 1990], [LIU et coll., 1991], [OLZAR et coll., 1993], ...). Cependant, la plupart des corrélations ne sont applicables que dans la gamme des paramètres testés.

Quelques modèles ont aussi été développés dont le plus récent par Krzywanski [KRZYWANSKI et coll., 1992]. Ce modèle permet de calculer le champ de vitesse du gaz et du solide ainsi que la porosité du lit dans la zone annulaire et dans la zone du jet.

1.3.2 Effet de la température

La majorité des études sur l'hydrodynamique du lit soufflé ont été menées avec de l'air à la température ambiante. En effet, les lits soufflés ont été développés initialement pour le séchage du blé. Par la suite d'autres applications telles que la gazéification et la combustion du charbon ont été développées. Les températures élevées (700 - 900 °C) nécessitées par ces applications ont conduit les chercheurs à s'intéresser à l'influence de la température sur l'hydrodynamique du lit soufflé. Le nombre des études reste toutefois très restreint [WU et coll., 1987], [YE et coll., 1992].

WU a utilisé une colonne de 156 mm de diamètre avec un angle de cône à la base de 60°. Le sable d'Ottawa a été utilisé comme solide granuleux. L'étude menée dans la gamme de température [20 - 420°C] avec différents gaz (air, hélium et méthane) a montré que la zone de stabilité du lit soufflé diminue lorsque la viscosité du gaz augmente et lorsque sa densité diminue ce qui a permis de conclure à une diminution de la stabilité lorsque la température du gaz augmente.

YE a utilisé une colonne de 152 mm avec un angle de cône à la base de 60°. Le sable de silice a été utilisé comme solide granuleux. La gamme de température explorée est plus large que dans l'étude précédente (20 - 880°C). L'étude a montré un mauvais accord des vitesses minimales de soufflage mesurées avec les équations publiées dans la littérature. Elle montre en outre que pour les larges particules ($d_p \geq 1.54$ mm), la vitesse minimale de soufflage augmente avec la température, alors que pour les particules de petite taille ($d_p \leq 1.09$ mm), elle diminue lorsque la température augmente (figure 1.3).

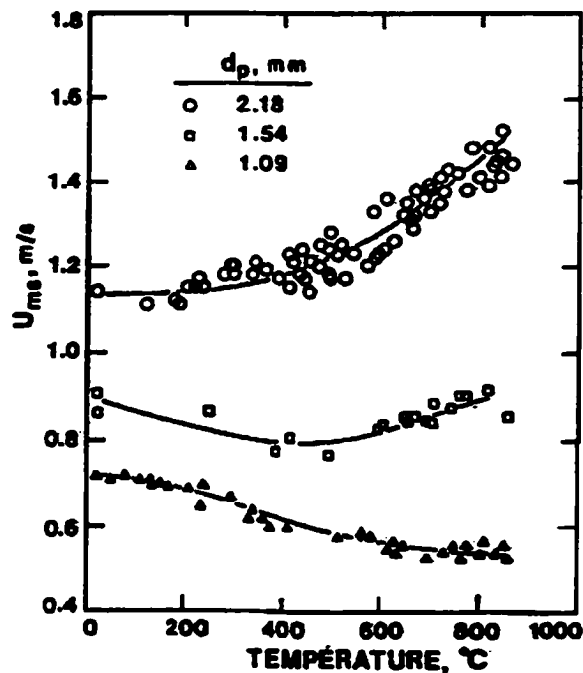


Figure 1.3 Effet de la température et du diamètre des particules sur la vitesse minimale de soufflage U_{ms} , d'après [YE et coll., 1992].

Cette tendance n'est pas prédite par les équations les plus utilisées, [MATHUR et coll., 1955]:

$$U_{ms} = \left(\frac{d_p}{D_c}\right)\left(\frac{D_i}{D_c}\right)^{\frac{1}{3}} \left[2gH \frac{(\rho_s - \rho_f)}{\rho_f} \right]^{0.5} \quad (1.1)$$

et [WU et coll. 1987]:

$$U_{ms} = 10.6 \left(\frac{d_p}{D_c}\right)^{1.05} \left(\frac{D_i}{D_c}\right)^{0.266} \left(\frac{H}{D_c}\right)^{-0.095} \left[\frac{(\rho_s - \rho_f)}{\rho_f} \right]^{0.256} (2gH)^{0.5} \quad (1.2)$$

qui ne tiennent compte de l'effet de la température que par la variation de la densité du gaz .

Dans ces équations:

U_{ms} est la vitesse minimale de soufflage (analogue à la vitesse minimale de fluidisation),

d_p est le diamètre moyen des particules,

D_c et D_i sont respectivement le diamètre de la colonne et le diamètre de l'injecteur,

H est la hauteur statique du lit de particules,

ρ_s et ρ_f sont respectivement les masses volumiques du solide et du fluide et

g est l'accélération de la pesanteur.

En ce qui concerne la hauteur maximale de soufflage, H_m , l'équation de McNab et Bridgwater [McNab et coll. 1977]:

$$H_m = \left(\frac{D_c^2}{d_p}\right)\left(\frac{D_c}{D_i}\right)^{\frac{2}{3}} \left(\frac{700}{Ar}\right) [(1 + 35.9 \times 10^{-6} Ar)^{0.5} - 1]^2 \quad (1.3)$$

où Ar est le nombre d'Archimède ($Ar = \frac{g d_p^3 \rho_f (\rho_s - \rho_f)}{\mu^2}$),

prédit la même évolution observée par les auteurs en fonction de la température du lit: H_m diminue lorsque la température du lit augmente (figure 1.4).

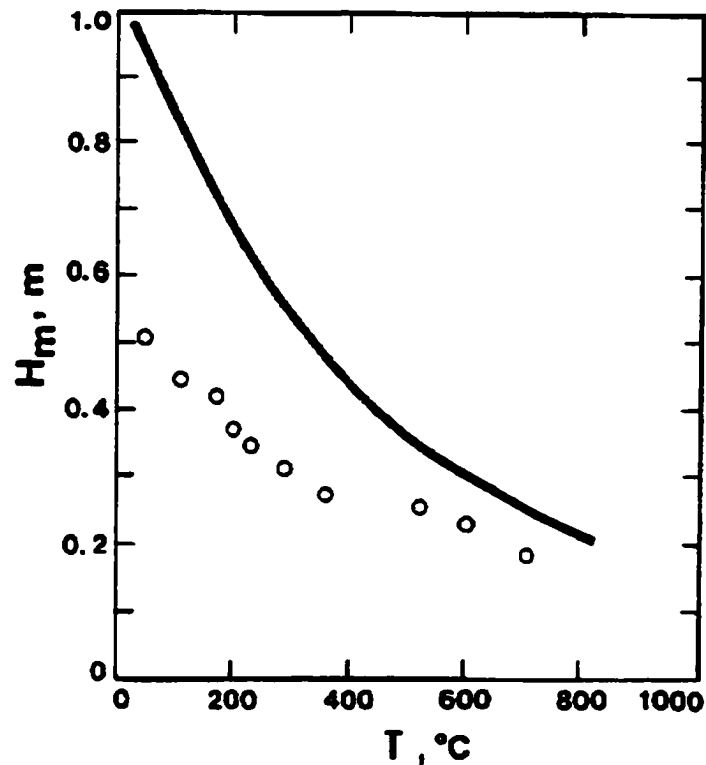


Figure 1.4 Effet de la température sur H_m . Résultats expérimentaux de YE (o) comparés à la corrélation de McNab (équation 1.3 en traits plein), d'après [YE et coll., 1992].

Cette tendance confirme par ailleurs la diminution de la zone de stabilité du lit soufflé avec la température du lit observée par les auteurs.

Les auteurs notent d'autre part que pour des hauteurs de lit voisines de H_m , l'affaissement du lit (cessation du régime de lit soufflé) est dû aux pulsations de l'interface zone du jet - zone annulaire au voisinage de la surface du lit et non à la fluidisation du lit près de la surface comme c'est le cas pour les lits soufflés à la température ambiante. Ils concluent que l'instabilité de l'interface jet-anneau augmente avec la température.

1.3.3 Hydrodynamique du lit soufflé par plasma

Par rapport au lit soufflé standard, l'hydrodynamique du lit soufflé par plasma se complique par l'effet de la température sur les caractéristiques du solide et du gaz, ainsi que par

l'existence de gradients thermiques importants à l'intérieur du réacteur ce qui pose la problématique de la définition d'une température de référence.

Les études portant sur l'hydrodynamique du lit soufflé par plasma sont très réduites. À notre connaissance, seule l'équipe de Flamant à l'I.M.P. Odeillo - France, s'est intéressée au problème [FLAMANT, 1990a], [BAMRIM et coll., 1992].

Dans la première référence, l'auteur s'est intéressé à la variation de la hauteur maximale de soufflage avec la température et le diamètre des particules. L'étude est menée dans une colonne de 90 mm de diamètre avec une base conique d'angle 60°. Comme solide granuleux, l'alumine (corindon) de diamètre 0.4 à 2.36 mm, a été utilisé. Le plasma d'argon est généré par une torche DC sertie à la base du réacteur. La température moyenne du lit est calculée en effectuant une moyenne arithmétique des températures mesurées par 23 thermocouples placés en différents endroits du lit. Des relations de proportionnalités sont déduites par l'auteur pour H_m en fonction de d_p (équation 1.4) et U_{ms} en fonction de H_m (équation 1.5).

$$H_m \propto d_p^{-0.77} \quad (1.4)$$

$$U_{ms}(T_{fe}) \propto H_m^{0.45} \quad (1.5)$$

$U_{ms}(T_{fe})$ est la vitesse minimale de soufflage déterminée à la sortie de l'anode et T_{fe} est la température enthalpique moyenne du fluide (plasma) à la sortie de l'anode.

Il conclut que l'équation 1.4 est en accord avec la corrélation de Malek [MALEK et coll., 1965] déterminée pour des lits soufflés standard à la température ambiante. Cette corrélation prévoit en effet que $H_m \propto d_p^{-0.75}$. L'équation (1.5) est en outre en accord avec la corrélation de Mathur et Ghishler [MATHUR et coll., 1955] qui prévoit en effet que $U_{ms} \propto H^{0.5}$ (voire équation 1.1).

Par contre, la tendance observée pour H_m en fonction de la température moyenne du lit (H_m augmente lorsque T_b augmente) est en désaccord avec les résultats de YE [YE et coll., 1992] (voire figure 1.4) et avec l'équation de McNab (équation 1.3 ci-dessus). Ce fait a été expliqué par

le choix inadéquat de la température de référence (température du lit) qui ne tient pas compte de la température du jet de plasma. Ceci ne fait que relancer la problématique de la définition d'une température de référence dans le cas des lits soufflés par plasma. Mais à notre avis le désaccord entre les deux tendances d'évolution de H_m avec la température est aussi dû à la définition que donne Flamant de la hauteur maximale du soufflage qui correspond en fait à la hauteur du lit au minimum de soufflage et non à H_m telle qu'elle a été définie pour les lits soufflés standard [EPSTEIN et coll. 1974].

Bamrim [BAMRIM et coll. 1992], s'est intéressé à la transition lit fixe - lit soufflé et à la détermination d'une corrélation pour la vitesse minimale de soufflage dans le réacteur à lit soufflé par plasma. Le réacteur utilisé comporte une colonne de 10 cm de diamètre sertie sur une base conique en ciment réfractaire d'angle 60°. Le gaz utilisé est l'argon. Deux types de solide granuleux ont été utilisés: Alumine (corindon) et carbure de silicium pour couvrir une gamme de diamètre de particule 0.8 à 2.36 mm et une densité de solide 2600 à 3900 kg/m³. Les résultats expérimentaux ont été corrélés par l'équation :

$$St_{ms} = 4.84 \times 10^{-4} Ar^{0.53} \left[\frac{D_i}{D_c} \right]^{0.09} \left[\frac{H}{D_c} \right]^{0.22} \left[\frac{\rho_s d_p}{\rho_f D_i} \right]^{0.9} \left[\frac{\rho_F}{\rho_\infty} \right] \left[\frac{v_\infty}{v_F} \right]^{0.15} \quad (1.6)$$

où St_{ms} est le nombre de Stokes défini par:

$$St_{ms} = \frac{\rho_s U_{ms}(T_F) d_p^2}{\mu(T_F) D_i} \quad (1.7)$$

Dans l'équation 1.6, les différentes quantités portant les indices F et ∞ sont calculées respectivement aux températures de film $T_F = \frac{T_b + T_\infty}{2}$ et température enthalpique moyenne du plasma à la sortie de l'anode T_∞ . T_b est la température moyenne du lit.

À notre connaissance, la corrélation 1.6 est la seule qui a été établie à date pour le lit soufflé par plasma.

1.4 Transfert de chaleur

1.4.1 Dans le lit soufflé standard

Les opérations menées dans les réacteurs à lit soufflé font intervenir en général des transferts de masse et de chaleur. L'étude du transfert de chaleur dans le réacteur permet cependant de mieux comprendre ce phénomène découlé du transfert de masse et éventuellement de pouvoir établir des relations utiles pour le calcul des différents coefficients de transfert:

- h_p : coefficient de transfert de chaleur fluide - particules.
- h_w coefficient de transfert lit - paroi.

Les caractéristiques de la zone du jet et de la zone annulaire (porosité, vitesse des particules et du gaz) sont très différentes. En conséquence les coefficients de transfert de chaleur dans ces deux régions sont différents. Les valeurs typiques sont: $h_p \approx 50$ W/m²K dans la zone annulaire et $h_p \approx 400$ W/m²K dans la zone du jet [EPSTEIN et coll., 1974]. Les deux corrélations les plus utilisées pour le calcul de ces coefficients sont celle de Rowe et Claxton (équation 1.8) pour la zone du jet où le nombre de Reynolds relatif à la particule excède généralement 1000 [ROWE et coll., 1965], et celle de Littman et Silva (équation 1.9) pour la zone annulaire où le nombre de Reynolds relatif à la particule est inférieur à 100 [LITTMAN et coll. 1971].

$$Nu = \frac{h_p d_p}{k_f} = \frac{2}{\left[1 - (1 - \varepsilon)^{\frac{1}{3}}\right]} + \left(\frac{2}{3\varepsilon}\right) Pr^{1/3} Re^{0.55} \quad (1.8)$$

$$Nu = \frac{h_p d_p}{k_f} = 0.42 + 0.35 Re^{0.8} \quad (1.9)$$

Pour le coefficient de transfert de chaleur lit - paroi, la corrélation (équation 1.10) établie par Malek et Lu [MALEK et coll., 1964], est la plus utilisée.

$$\frac{h_w d_p}{k_f} = 0.54 \left(\frac{d_p}{H}\right)^{0.17} \left(\frac{d_p^3 \rho_f^2 g}{\mu^2}\right)^{0.52} \left(\frac{\rho_b C_{ps}}{\rho_f C_{pf}}\right)^{0.45} \left(\frac{\rho_f}{\rho_b}\right)^{0.08} \quad (1.10)$$

1.4.2 Dans les lits soufflés/fluidisés par plasma

Le transfert de chaleur dans le lit fluidisé par plasma a été étudié par [GOLDBERGER et coll., 1963] et [AMOUROUX et coll., 1968]. La vitesse de trempe mesurée par Goldberger qui a utilisé un jet de plasma immergé dans le lit est de 50.10^6 K/s, alors que Amouroux a mesuré une vitesse de trempe plus faible $0.4 \cdot 10^6$ K/s dans une configuration où le jet est situé à l'extérieur du lit. Il faut noter aussi que dans le cas de Goldberger, une torche DC est utilisée pour générer le plasma alors que dans le cas d'Amouroux c'est une torche RF qui est utilisée. La vitesse du jet généré par une torche DC est en général supérieure à celle du jet généré par une torche RF ce qui peut contribuer à améliorer le coefficient de transfert de chaleur plasma - particule et à augmenter la vitesse de trempe.

Le transfert de chaleur dans le lit soufflé par plasma a été étudié par Flamant [FLAMANT et coll., 1988] et [FLAMANT, 1990a]. Sur la base de bilans énergétiques établis en régime transitoire, des rendements de transfert plasma - particules de 60 à 70% pour un plasma d'argon et de 90% pour un plasma d'azote, ont été mesurés [FLAMANT et coll., 1988].

À l'aide de 23 thermocouples placés en différents endroits du lit, l'auteur a mesuré les profils de température dans le lit (figure 1.5) [FLAMANT, 1990a]. L'équation de chaleur en régime transitoire dans le lit a ensuite été résolue numériquement et grâce à une procédure d'identification s'appuyant sur les profils mesurés, les conductivités effectives axiale et radiale dans le lit ont été calculées. Les valeurs des conductivités: 1000 W/mK (axiale) et 10 W/mK (radiale) permettent de conclure à un bon mixage axiale et une diffusion radiale très faible.

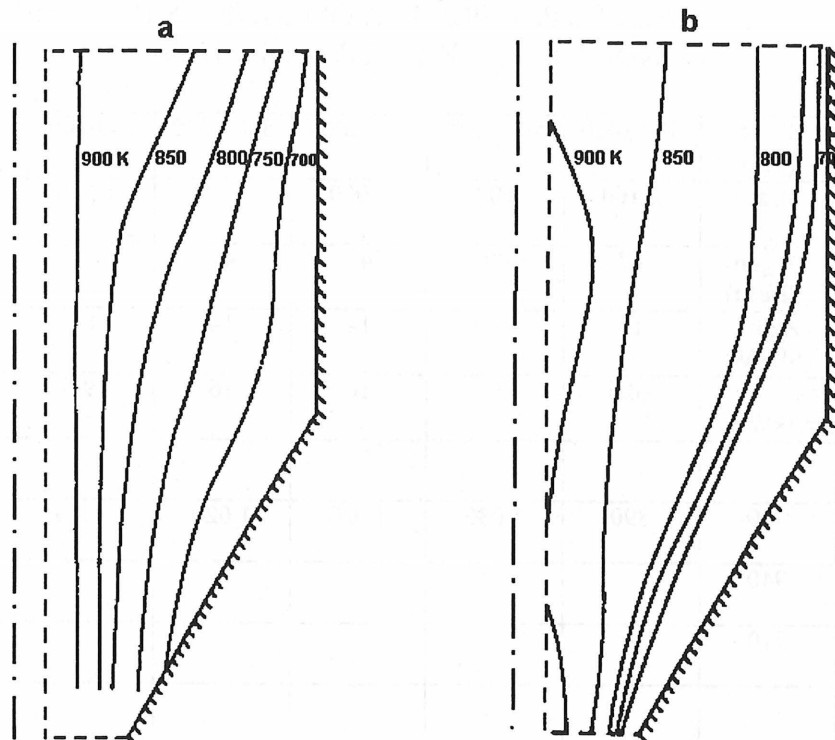
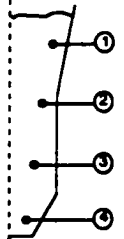


Figure 1.5 Isothermes dans le lit soufflé par plasma. (a) calcul, (b) mesures. [FLAMANT, 1990a].

La même conclusion concernant la diffusion axiale peut être déduite des résultats de Jurewicz [JUREWICZ et coll., 1985] qui s'est aussi intéressé à la mesure des profils de température dans le lit pour différentes conditions opératoires (tableau 1.2). En effet dans le tableau 1.2 (1^{ère} colonne), on peut remarquer que la température varie très peu sur la même verticale du moins dans la zone supérieure du lit (points de mesure 1, 2 et 3).

**TABEAU 1.2 PROFILES DE TEMPÉRATURE DANS LE RÉACTEUR À LIT
SOUFFLÉ PAR PLASMA OPÉRÉ SOUS DIFFÉRENTES
CONDITIONS [JUREWICZ et coll., 1985]**

Poudre Al ₂ O ₃	Taille (μm)	500-1000	500-1000	500-1000	500-1000	500-1000	595-710	595-710	
	masse (g)	2 160	800	1 000	1 500	1 500	1 000	1 000	
débit du gaz plasmagène	Argon (SLPM)	47	47	47	47	47	47	23	
	Azote (SLPM)	14	--	14	14	19	--	14	
Puissance d'alimentation (kW)		18.6	9	16	16	19.8	10	28	
Température (K)									
	①	990	890	1 030	1 020	1 020	1 020	933°	1143°
	②	940							
	③	910							
	④							423°	403°

Toutes les températures sont mesurées par pyromètre sauf celles marquées d'un astérisque (*).

1.5 Attrition et élutriation

Les particules solides dans le lit soufflé subissent des frictions interparticulaires et avec les parois du réacteur dans la zone annulaire, des chocs interparticulaires dans la zone du jet et contre les parois du réacteur dans la zone au dessus du lit. Ces différents phénomènes conduisent à une dégradation de taille et de forme du matériel granuleux. Ce phénomène est connu sous le terme attrition.

L'élutriation est un phénomène qui s'associe souvent à l'attrition. Il s'agit du phénomène d'entraînement des particules fines par les gaz hors de l'enceinte (réacteur). Ces mêmes particules fines ayant été produites au préalable par l'attrition de particules plus grosses.

L'attrition est un phénomène indésirable et peut nuire au procédé pour deux raisons majeures:

- le changement des propriétés physiques du matériel telles que la distribution de taille des particules, leur forme, la surface spécifique et la densité apparente du matériel agit directement sur sa facilité d'écoulement et peut influencer l'hydrodynamique du réacteur.
- la génération de particules fines et poussières peut causer des pertes importantes de matériel et conduire à des investissements supplémentaires dans les infrastructures de recyclage ou de contrôle pour prévenir les dommages à la santé des individus et à l'environnement en général.

L'attrition peut sévèrement sanctionner l'utilisation du procédé de lit soufflé dans certain cas. Ceci dépend de l'application, des caractéristiques du solide granuleux et de l'étendue de réduction de taille acceptable. Ainsi, dans les réacteurs catalytiques, l'attrition pose de sérieux problèmes. En effet dans ces procédés l'attrition cumulative du solide (catalyseur) durant une période d'utilisation assez longue doit rester dans des limites acceptables. C'est probablement ce fait qui a limité l'utilisation de lits soufflés comme réacteurs catalytiques [EPSTEIN et coll., 1974].

L'attrition dans le lit soufflé peut être bénéfique pour certaines applications:

- Traitement de solides qui ont tendance à l'agglomération comme dans le cas de la carbonisation du charbon et de la réduction du minerai de fer.
- Dans les réactions solide/gaz en général, l'attrition permet par défrichement de la surface de la particule d'exposer continuellement une surface fraîche au gaz réactif et limiter ainsi les problèmes de diffusion de gaz à travers la couche de produit.

Dans le lit soufflé par plasma, les phénomènes d'attrition et d'élutriation sont accentués par les vitesses élevées communiquées aux particules entraînées dans le jet ainsi que par la température élevée caractéristique de ce type de réacteur.

Certaines études se sont intéressées à l'attrition dans le réacteur à lit soufflé par plasma:

- Jurewicz [JUREWICZ et coll., 1985], par mesure de la distribution de taille du solide (alumine) avant et après traitement, note une attrition sévère du matériel après seulement 10 minutes de traitement avec un plasma Ar/N₂ à une puissance de 28 kW. En effet , le diamètre moyen des

particules est passé de 750 μm à 500 μm . La température élevée mesurée dans le lit (voire tableau 1.2) et la vitesse de jet qui est considérable à une telle puissance sont responsables de l'attrition sévère constatée. Dans le montage utilisé, la présence d'un déflecteur au dessus du lit pour limiter l'entraînement des particules par le gaz, a aussi probablement contribué à ce résultat.

- Flamant [FLAMANT et coll., 1990b], a mesuré le taux d'attrition de la calcite au cours de sa décarbonation dans un plasma Ar/N_2 . Il note que l'attrition et la décarbonation ont lieu simultanément à des taux significatifs. Un taux d'attrition de 10 % /min a été mesuré et le diamètre moyen des fines, produits à partir d'une poudre de diamètre moyen initial de 111 à 172 μm , est de 20 à 30 μm . Les expériences effectuées montrent aussi que l'attrition diminue au cours du temps et augmente avec l'enthalpie du plasma.

Certain auteurs ayant utilisé le lit soufflé par plasma ont par ailleurs attribué le faible rendement constaté aux problèmes d'attrition et d'élutriation. Ainsi Munz [MUNZ et coll., 1990] au cours de l'étude de la calcination du minerai de vanadium (V_2O_5) dans un lit soufflé-fluidisé par un plasma Ar/N_2 , attribue le faible rendement obtenu à l'élutriation sélective du sel (Na_2CO_3) au cours de l'opération.

1.6 Conclusion

L'analyse bibliographique sur les réalisations et études faites dans les réacteurs à lits fluidisés par plasma en générale et sur les lits soufflés par plasma en particulier permet de dégager les conclusions suivantes:

- Les champs d'application visés sont principalement: la pyrolyse des hydrocarbures, le traitement de minerais à haute température et l'élaboration des matériaux.
- Le développement des applications est freiné par la méconnaissance des caractéristiques hydrodynamiques et de transfert de chaleur dans ces réacteurs. Des problèmes d'agglomération, d'attrition excessive et d'élutriation ont aussi été rapportés par les auteurs.
- Les études portant sur l'hydrodynamique du lit soufflé standard à haute température ainsi que sur le lit soufflé par plasma montrent que les tendances observées pour certaines caractéristiques hydrodynamiques telles que la vitesse minimale de soufflage et la hauteur maximale de soufflage

ne sont pas prédites ou sont en désaccord complet avec les corrélations établies à basse température.

- Les études sur le transfert de chaleur dans le lit soufflé par plasma montrent que ce réacteur peut donner des rendements énergétiques importants (70 - 90%) et qu'on peut atteindre des températures de traitement élevées selon la puissance et la nature de gaz utilisés.
- Les études sur l'attrition montrent que ce réacteur est caractérisé par un taux d'attrition élevé.

Enfin le champ d'étude sur les caractéristiques de ce type de réacteur, qui est à priori très prometteur, reste ouvert pour une meilleure connaissance de ses caractéristiques hydrodynamiques et thermiques ainsi que sur les problèmes d'attrition rapportés. En effet le nombre d'études faites à date dans ces domaines est limité et insuffisant pour promouvoir le développement de ce réacteur.

CHAPITRE 2

.

2. HYDRODYNAMIQUE DU RÉACTEUR À LIT SOUFFLÉ PAR PLASMA DC

2.1 Introduction

Les recherches menées par différents auteurs (voire chapitre 1) pour coupler les avantages multiples des lits fluidisés avec un jet de plasma ont conduit au développement de différentes configurations et différentes applications. Le réacteur à lit soufflé par plasma offre des avantages multiples:

- Le jet de plasma est confiné dans le lit de solide ce qui permet de limiter les pertes thermiques par rayonnement et convection.
- L'efficacité d'échange plasma - particules est élevée.
- La densité de puissance par unité de volume du réacteur est élevée. Ce qui permet la réalisation d'unités compactes.
- La recirculation vigoureuse du solide continuellement entraîné par le jet permet de réaliser des traitements nécessitant des temps de séjour importants.
- Le réacteur s'adapte facilement à un fonctionnement continu.
- L'apport d'énergie électrique est facilement contrôlable par variation du courant.

Dans le réacteur à lit soufflé par plasma, le jet de plasma est utilisé comme gaz vecteur d'entraînement des particules, comme source de chaleur et comme milieu fluide réactif. La complexité et la méconnaissance des différents phénomènes impliqués ont freiné son développement sur le plan industriel. Le nombre d'études qui se sont intéressées au problème est très réduit.

L'objectif final de cette étude est la réalisation d'un réacteur chimique à lit soufflé par plasma dans lequel certaines opérations telles que : traitement de minerai, gazéification et traitement de déchets solide pourraient être étudiées. Devant l'absence de tout critère de conception et de dimensionnement d'un tel réacteur, il est apparu nécessaire de mener une étude de caractérisation afin de mieux comprendre les phénomènes impliqués et de voir les possibilités et les limites de ce réacteur. La caractérisation comprend donc l'étude de l'hydrodynamique, du transfert de chaleur et de l'attrition dans le réacteur. À la dernière phase du projet, la gazéification du coke de pétrole par CO_2 a été testée comme application.

2.2 Montage d'étude préliminaire

La dynamique du lit soufflé est plus compliquée que celle du lit fluidisé. Dans le cas du lit fluidisé, le gaz est distribué de manière quasi uniforme à travers le lit et le seul paramètre hydrodynamique important est la vitesse minimale de fluidisation. Le lit soufflé est réalisé en forçant un fluide dans la direction ascendante à travers un orifice au centre d'une base conique. On obtient alors, si certaines conditions critiques sont réalisées, un mouvement cyclique du solide granuleux. Dans la zone du jet, le solide est entraîné en phase diluée vers le haut, alors que dans la zone annulaire le solide se comporte comme un lit dense (assimilé à un lit fixe) en mouvement vers le bas et de la périphérie vers le centre. Ceci est illustré dans la figure 2.1.

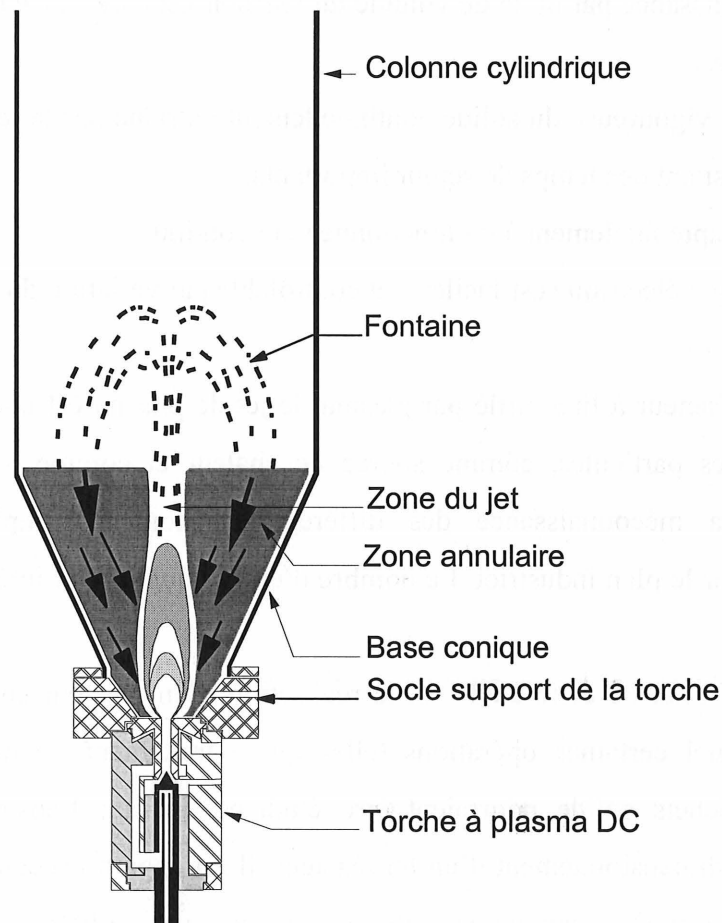


Figure 2.1 Description du lit soufflé par une torche à plasma DC

Les premières expériences et observations ont été menées en utilisant un montage simple qui permet l'observation visuelle de la réponse du réacteur à différentes conditions d'opération.

2.2.1 Description du montage

Le montage est composé principalement d'une colonne de pyrex et d'une torche à plasma DC sertie à la base de la colonne. Les dimensions de la colonne sont données en figure 2.2 et le schéma détaillé de la torche à plasma DC utilisée est illustré en figure 2.3.

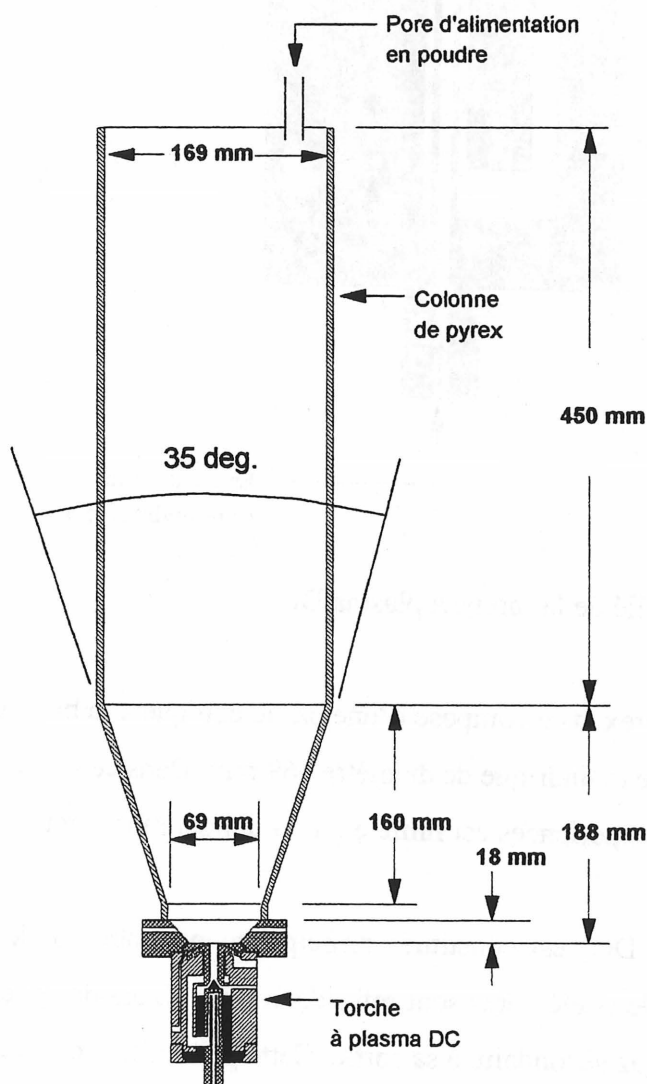


Figure 2.2 Schéma et dimensions de la colonne de Pyrex

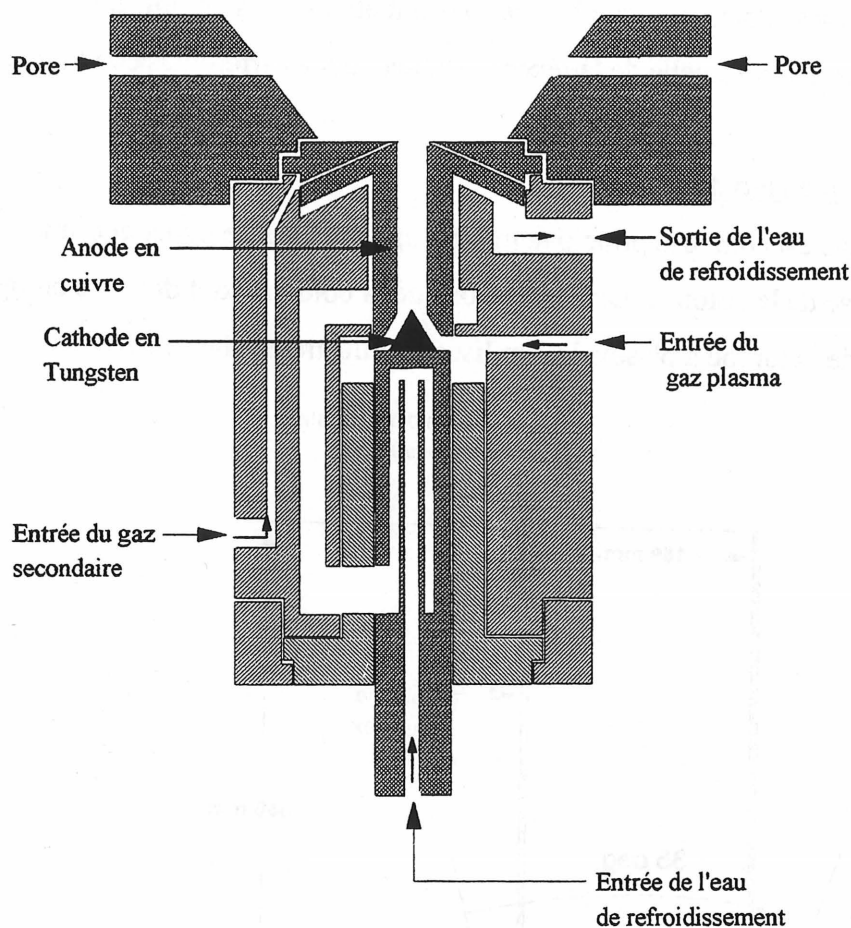


Figure 2.3 Schéma détaillé de la torche à plasma DC

La colonne est en Pyrex et se compose d'une partie conique à la base, d'angle d'ouverture 35°, prolongée par une partie cylindrique de diamètre 169 mm. Dans ce montage, la colonne n'est pas refroidie. La durée des expériences est limitée par la température atteinte par le Pyrex qui ne doit pas dépasser 450°C.

La torche à plasma DC est constituée principalement d'une anode en cuivre et d'une cathode en tungstène. Les deux éléments sont refroidis à l'eau. L'anode est conçue de manière à permettre l'injection d'un gaz secondaire à sa sortie. Cette possibilité ne sera utilisée que lors des expériences de gazéification. Deux pores sont percés à la partie supérieure du socle qui supporte la torche et qui permet son adaptation à l'entrée du réacteur. Ces deux pores permettent l'introduction de thermocouples ou sont utilisés comme prise de mesure de pression à la base du lit.

2.2.2 Résultats et observations

Les premières expériences ont été consacrées à l'observation du comportement du réacteur sous différentes conditions de puissance, débit de gaz et taille des particules. Le solide granuleux utilisé est de l'alumine α (corindon). Deux catégories de taille ont été utilisées. Les caractéristiques de ces deux catégories sont résumées dans le tableau 2.1 ci-dessous.

TABLEAU 2.1 CARACTÉRISTIQUES DU MATÉRIEL GRANULEUX UTILISÉ LORS DES EXPÉRIENCES DANS LE MONTAGE PRÉLIMINAIRE

Nom commercial de la poudre	Diamètre moyen , d_p (mm)	Densité apparente, ρ_b (g/cm ³)
Alumine, Grit 60	0.26	1.98
Alumine, Grit 30	0.74	2.09

Le diamètre moyen réciproque des particules d_p est calculé à partir de l'équation (2.1):

$$d_p = \frac{1}{\sum_i x_i/d_{pi}} \quad (2.1)$$

où x_i est le pourcentage massique des particules de diamètre moyen d_{pi} obtenu par tamisage. d_{pi} étant la moyenne des tamis supérieur et inférieur. La procédure de tamisage et la relation (2.1) sont commentées au chapitre 4 (attrition et élutriation).

Quelques expériences ont été menées avec le montage préliminaire décrit ci-dessus. Les résultats et conditions d'opération de l'une des expériences menée avec Al_2O_3 , Grit 60 sont résumés dans le tableau 2.2 ci-dessous. Au cours de cette expérience, la puissance d'alimentation a été variée entre 6.75 et 11.5 kW. Des observations de comportement du lit en fonction de la puissance ont été relevées et des photos de l'aspect du lit ont été prises. La température à la base du lit T_{base} a été mesurée à l'aide d'un thermocouple type "K" introduit à partir du pore sur le socle support de la torche (voire figure 2.3). La température dans la fontaine, T_f a été mesurée à l'aide d'un pyromètre.

TABLEAU 2.2 CONDITIONS OPÉRATOIRES D'UNE EXPÉRIENCE MENÉE DANS LE MONTAGE PRÉLIMINAIRE (Al_2O_3 Grit 60)

Gaz plasmagène	Nature	Mélange Ar/N_2	
	Débit	24 SLPM (17% N_2)	
Gamme de puissance 6.75 - 11.5 kW	I	225 - 230 A	
	V	20 - 50 V	
Matériel granuleux	Nature	$\text{Al}_2\text{O}_3 \alpha$	
	Granulométrie	Grit 60 (d_p moyen: 262 μm)	
	Procédure de charge	Incrément	500 g
		Charge totale	3845 g
Durée de l'expérience	1 heure		
Températures mesurées	T_{base}	200 - 300°C	
	T_F	900 - 950°C (mesurée dans la fontaine)	

Une photo de l'aspect du lit observé au cours de l'expérience est présentée en figure 2.4.

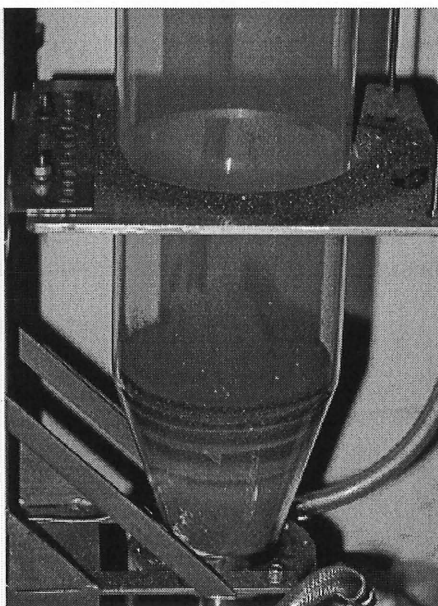


Figure 2.4 Photo de l'aspect du lit observé au cours de l'expérience décrite dans le tableau 2.2

Dans le tableau 2.3, sont rapportées les conditions opératoires et résultats au cours d'une expérience menée avec Al_2O_3 Grit 30.

TABLEAU 2.3

CONDITIONS OPÉRATOIRES D'UNE EXPÉRIENCE MENÉE DANS
LE MONTAGE PRÉLIMINAIRE (Al_2O_3 Grit 30)

Gaz plasmagène	Nature	Mélange Ar/ N_2	
	Débit	24 SLPM (16% N_2)	
Gamme de puissance 10 kW	I	200 A	
	V	50 V	
Matériel granuleux	Nature	$\text{Al}_2\text{O}_3 \alpha$	
	Granulométrie	Grit 30 (d_p moyen: 710 μm)	
	Procédure de charge	Incrément	500 g
		Charge totale	2000 g
Durée de l'expérience	1 heure		
Températures mesurées	T_{base}	250 - 300°C	
	T_{surface}	675 - 750°C	
	T_F	670 - 870°C (mesurée dans la fontaine)	
	T_{Pyrex}	190 - 225 °C	

Au cours de cette expérience la puissance d'alimentation a été maintenue à 10 kW. Les températures en surface du lit T_{surface} , à la base du lit T_{base} et sur la paroi du pyrex T_{pyrex} , ont été mesurées à l'aide de thermocouples type "K". L'évolution de ces températures ainsi que les emplacements des thermocouples sont présentés en figure 2.5.

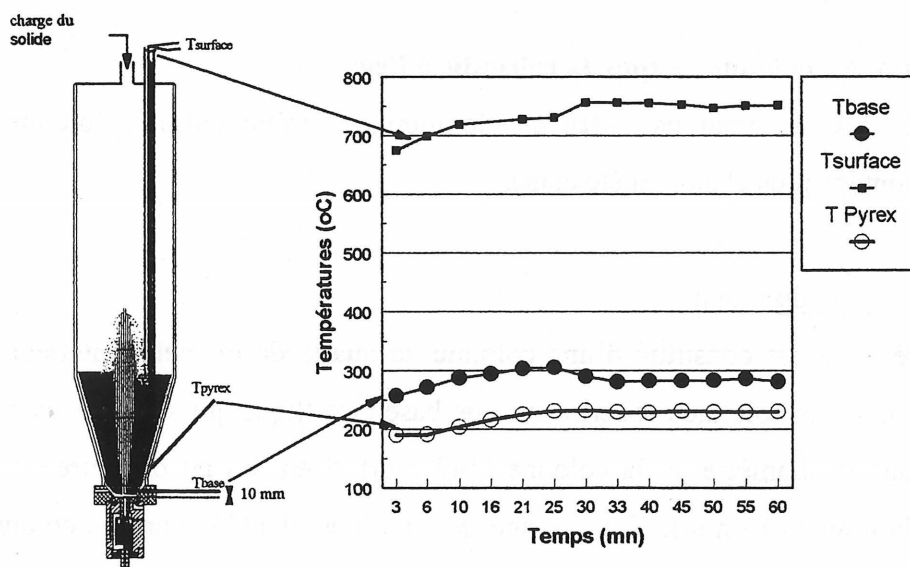


Figure 2.5 Évolution des températures au cours de l'expérience décrite dans le tableau 2.3.

Les conclusions suivantes résument les résultats et observations au cours des expériences préliminaires:

- La taille des particules a une influence importante sur l'hydrodynamique. Pour les deux tailles de particules testées, la circulation des poudres (mouvement vers le bas dans l'anneau) observée à travers la paroi de la colonne est plus importante dans le cas des grosses particules.
- La quantité de solide qu'on peut charger dans le réacteur, sous les mêmes conditions de débit de gaz et de puissance, est plus importante dans le cas des particules les plus fines. Cependant l'observation visuelle a permis de constater que seule une partie du lit au centre de la colonne est en circulation alors qu'une importante zone périphérique reste stagnante.
- La température des particules mesurée dans la fontaine à l'aide d'un pyromètre est plus élevée dans le cas des particules fines.
- Il existe des gradients de température importants entre la base et la surface du lit.
- Les tests sous différentes conditions de débit, de charge et de puissance ne montrent aucune tendance à l'agglomération du solide utilisé.
- Pour une quantité de solide donnée chargée dans le réacteur, l'aspect du lit et son comportement hydrodynamique dépend du débit du gaz et de la puissance utilisée.

2.3 Montage à colonne de quartz refroidie à l'eau

Après les observations faites sur le montage préliminaire à colonne de Pyrex, un deuxième montage plus élaboré a été conçu.

2.3.1 Description du montage

Le réacteur est constitué d'une colonne de quartz de diamètre intérieur 143 mm et de hauteur 500 mm. La colonne est sertie sur une base métallique qui supporte un cône en graphite ajusté en haut au diamètre de la colonne (143 mm) et en bas au diamètre de sortie du socle supportant la torche (70 mm). La colonne de quartz est doublée par une colonne en Pyrex de diamètre intérieur 190 mm. Le quartz est refroidi à l'eau qui circule dans l'espace inter annulaire. La base conique n'est pas refroidie. La colonne est prolongée en haut par une partie conique d'angle 80° qui épouse une partie cylindrique plus large de diamètre intérieur 199 mm. Le schéma global du montage est illustré en figure 2.6.

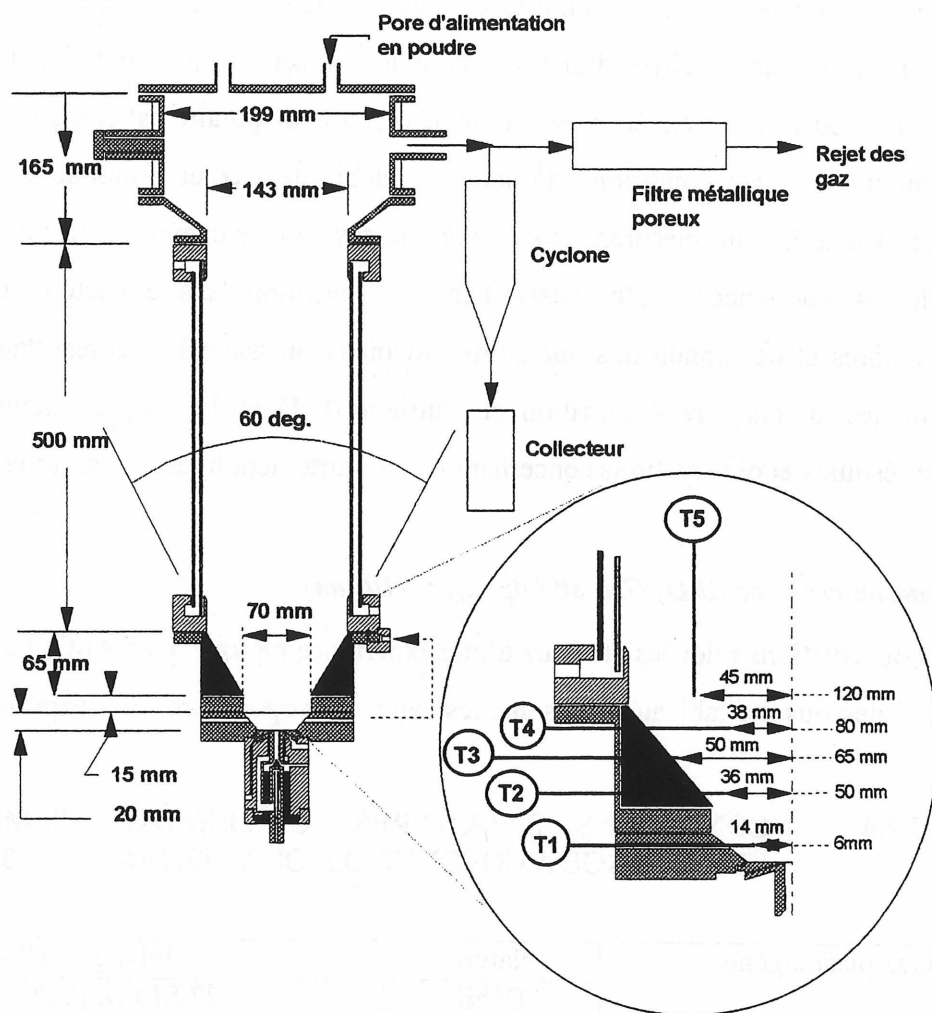


Figure 2.6 Schéma du montage à colonne de quartz

Dans le couvercle sont aménagés deux pores: l'un servant à l'alimentation des poudres et l'autre à l'introduction d'un thermocouple pour la mesure de la température à la surface du lit. Une sortie latérale en haut du réacteur sert à l'évacuation des gaz qui passent d'abord par un cyclone servant à la précipitation des poudres éluées et ensuite à travers un filtre métallique poreux (10 μm) pour retenir les particules les plus fines avant le rejet vers l'extérieur. La température dans le lit est mesurée grâce à 5 thermocouples type "K" dont 4 sont insérés latéralement en différentes positions à la base et le dernier est inséré par le haut du réacteur.

2.3.2 Résultats et observations

Dans le montage décrit ci-haut, plusieurs expériences ont été menées en utilisant comme solide granuleux les deux tailles d'alumine dont les caractéristiques ont été données dans le tableau 2.1. Au cours de ces expériences, la même quantité de poudre est chargée dans le réacteur (2 kg) quel que soit les conditions d'opération (débit de gaz et puissance). Les profils de température dans le lit sont mesurés, ils sont commentés dans le chapitre 3 (transfert de chaleur). Au cours de ces expériences on s'est aussi intéressé à l'attrition dans le réacteur en fonction de la taille des poudres et des conditions opératoires (débit et puissance). Les résultats sur l'attrition sont commentés au chapitre 4 (attrition et élutriation). Dans le chapitre actuel seuls seront exposés les résultats et observations concernant le comportement hydrodynamique du réacteur.

Expériences avec Al_2O_3 Grit 30 ($d_{p_{moyen}} = 710 \mu m$)

Les observations relevées au cours d'une expérience typique avec Al_2O_3 Grit 30 sont rapportées ci-dessous. Le tableau 2.4 résume les conditions opératoires de l'expérience.

TABEAU 2.4 CONDITIONS OPÉRATOIRES D'UNE EXPÉRIENCE MENÉE DANS LE MONTAGE À COLONNE DE QUARTZ (Al_2O_3 Grit 30)

Gaz plasmagène	Nature	Mélange Ar/N ₂	
	Débit	27 SLPM (26% N ₂)	
Puissance 10 kW	I	200 A	
	V	50 V	
Matériel granuleux	Nature	$Al_2O_3 \alpha$	
	Granulométrie	Grit 30 (d_p moyen: 710 μm)	
	Procédure de charge	Incrément	500 g
		Charge totale	2000 g
Durée de l'expérience	30 min		
Températures mesurées	Les températures sont mesurées à l'aide de thermocouples placés en différentes positions dans le lit comme indiqué en figure 2.8.		

L'aspect du lit observé est décrit en figure 2.7. et l'évolution des températures dans le lit est rapportée en figure 2.8.

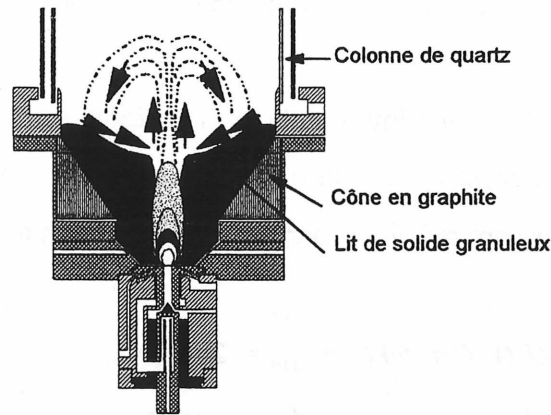


Figure 2.7 Aspect du lit au cours de l'expérience décrite au tableau 2.4

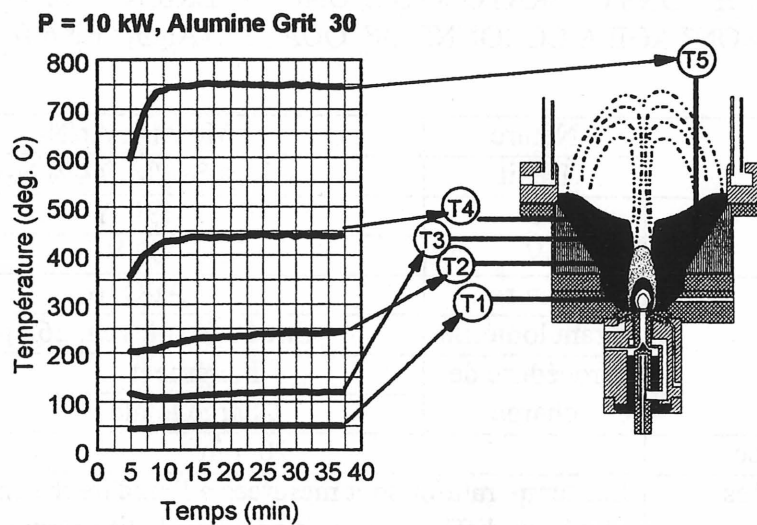


Figure 2.8 Profils de température mesurée dans le lit au cours de l'expérience décrite au tableau 2.4.

les observations suivantes ont été relevées au cours de cette expérience:

- le corps du jet reste visible,
- la circulation des poudres est visible en surface, le sens est décrit par les flèches en figure 2.7,
- la surface du lit n'est pas horizontale, la poudre forme un cône dont le centre est le jet,
- le régime hydrodynamique est du type lit soufflé à jet avec une fontaine diluée et dispersée,

- l'aspect du lit reste stable et garde le même comportement décrit en figure 2.7 durant toute la durée de l'expérience.

Des gradients de température importants existent dans le lit et la température à la base est très faible (50 °C) ce qui a permis de conclure à l'existence d'une zone stagnante dans le lit. À la base, les poudres stagnantes sont refroidies par l'eau (le socle support de la torche est refroidi).

Expériences avec Al_2O_3 Grit 60 ($d_{p\text{ moyen}} = 262 \mu m$)

Les observations relevées au cours d'une expérience typique avec Al_2O_3 Grit 60 sont rapportées ci-dessous. Le tableau 2.5 résume les conditions opératoires de l'expérience.

TABLEAU 2.5 CONDITIONS OPÉRATOIRES D'UNE EXPÉRIENCE MENÉE DANS LE MONTAGE À COLONNE DE QUARTZ (Al_2O_3 Grit 60)

Gaz plasmagène	Nature	Mélange Ar/N ₂	
	Débit	13.5 SLPM (44% N ₂)	
Puissance 11.4 kW	I	190 A	
	V	60 V	
Matériel granuleux	Nature	$Al_2O_3 \alpha$	
	Granulométrie	Grit 60 (d_p moyen: 262 μm)	
	Procédure de charge	Incrément	500 g
		Charge totale	2000 g
Durée de l'expérience	20 min		
Températures mesurées	Les températures sont mesurées à l'aide de thermocouples placés en différentes positions dans le lit comme indiqué en figure 2.10.		

Concernant la circulation des particules au dessus du lit, les mêmes observations faites dans le cas d'utilisation de Al_2O_3 Grit 30 et décrites dans la figure 2.7, ont été notées. Cependant, dans ce cas ci, il y a évolution de l'aspect du lit au cours de l'expérience. En effet la conicité de la surface du lit s'accroît au cours du temps. Le phénomène est décrit en figure 2.9. Cette évolution conduit à la chute de particules par paquets dans la zone du jet et à des étranglements périodiques conduisant à un régime de pistonage instable.

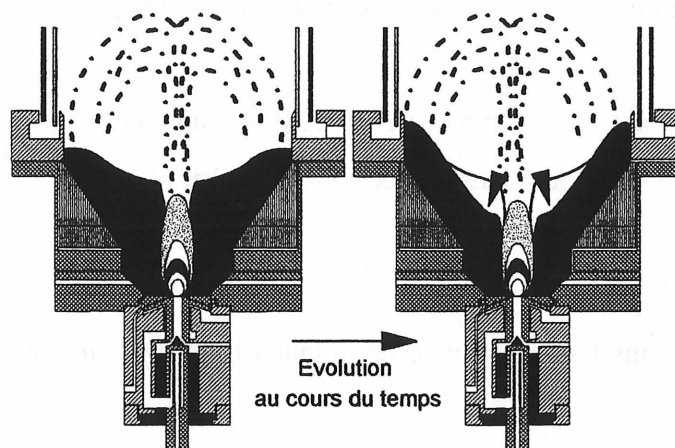


Figure 2.9 Évolution de l'aspect du lit au cours de l'expérience décrite au tableau 2.5

Le relevé de températures dans le lit présenté en figure 2.10 confirme ces observations.

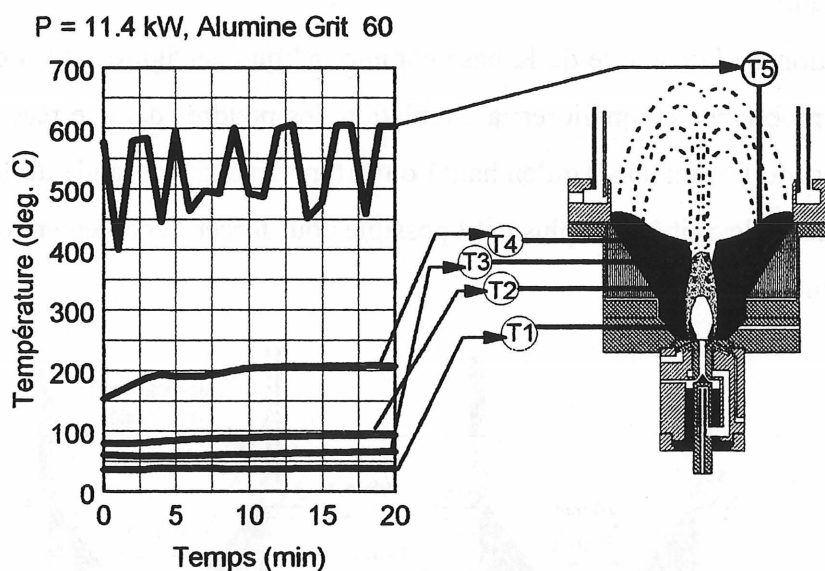


Figure 2.10 Profils de température mesurée dans le lit au cours de l'expérience décrite au tableau 2.5.

En effet les fluctuations de la température à la surface du lit (T_5) sont dues au comportement précédemment décrit. Les faibles températures mesurées à la base du lit sont dues à l'existence

d'une zone de lit stagnante refroidie par contact avec le socle support de la torche refroidi à l'eau.

Une comparaison qualitative des profils relevés au cours des deux expériences permet de conclure que la zone stagnante dans le cas de Al_2O_3 Grit 60 est plus importante que dans le cas de Al_2O_3 Grit 30.

Les observations faites sur le comportement hydrodynamique du réacteur ont amené les conclusions suivantes:

- La configuration de la base du réacteur décrite en détail à la figure 2.11.a ci-dessous est suspectée de favoriser la stagnation des particules à la base sur lesquelles se bâtit de bas en haut une couche de lit stagnante. L'étendue de la zone statique du lit est plus importante pour les particules les plus fines (Al_2O_3 Grit 60).
- La forme de la base du réacteur joue un rôle important dans son comportement hydrodynamique.
- La rectification de la conicité de la base comme indiqué en figure 2.11.b devrait permettre de résoudre ces problèmes et améliorer la circulation des poudres dans le réacteur. L'ouverture en bas du cône est de 10 mm alors qu'en haut l'ouverture dépend de l'angle utilisé.
- L'angle du cône devrait être le plus petit possible pour forcer l'écoulement des particules vers le jet à la base du réacteur.

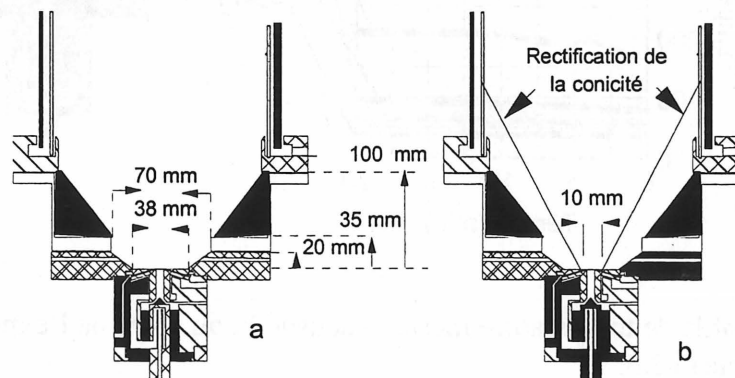


Figure 2.11 Rectification de la conicité de la base. a : géométrie actuelle. b: changement de géométrie proposé.

À la suite de ces conclusions, un premier cône de graphite de 20° a été usiné pour s'adapter à la base et à la colonne de quartz. Le choix de 20° comme angle du cône a été dicté par les observations précédentes et par des considérations pratiques et techniques.

2.3.3 Cône de graphite 20°

La nouvelle configuration de la base du réacteur avec le cône en graphite de 20° est décrite en figure 2.12. L'ouverture du cône à sa base est de 10 mm et la hauteur nécessaire à son adaptation au diamètre de la colonne de quartz est de 277 mm. Deux thermocouples sont insérés dans la partie conique et un thermocouple est inséré à partir du couvercle en haut du réacteur pour la mesure de la température à la surface du lit.

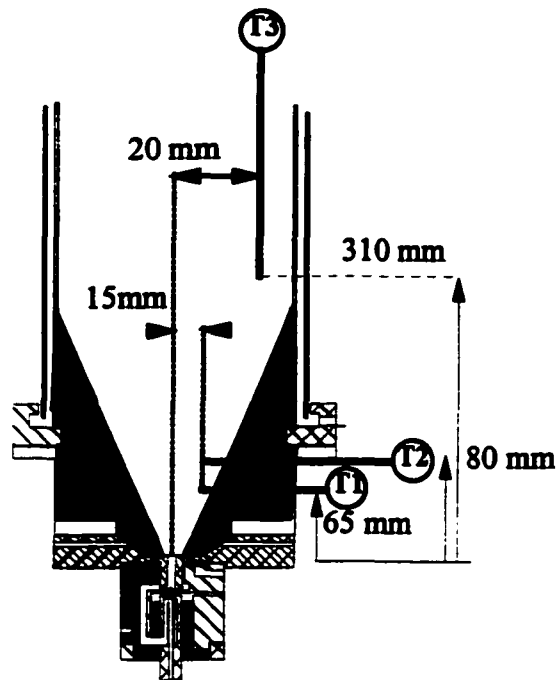


Figure 2.12 Configuration de la base du réacteur avec le cône de graphite 20°. Les positions des thermocouples sont indiquées.

Quelques expériences ont été menées dans la nouvelle configuration. La procédure suivie vise à voir le comportement hydrodynamique du réacteur pour des conditions de puissance et de débit de gaz fixées et pour les deux tailles de particules Al_2O_3 Grit 30 et Grit 60. Après allumage de la torche et le réglage du débit de gaz et du courant, le solide est chargé graduellement dans le

réacteur jusqu'à extinction du jet. L'évolution de la perte de charge à travers le lit est mesurée grâce à un manomètre à eau.

Expériences avec Al_2O_3 Grit 30 ($dp_{moyen} = 720 \mu m$)

Quatre expériences ont été menées avec la poudre Al_2O_3 Grit 30 dans le montage à colonne de quartz et angle de cône 20° . Au cours de ces expériences, la valeur du courant est fixée à 250 A et deux valeurs de débits de gaz Ar/ N_2 ont été utilisées: 10 et 20 SLPM avec 20% N_2 . Pour chaque débit, l'expérience est répétée pour tester la reproductibilité des phénomènes observés ainsi que de la charge de solide atteinte avant l'extinction du jet pour un débit donné. Le tableau 2.6 ci-dessous résume les conditions opératoires au cours de ces expériences. La procédure de charge, la charge maximale atteinte et la hauteur statique du lit correspondante pour chacune des 4 expériences sont aussi indiquées dans le tableau 2.6.

TABEAU 2.6 CONDITIONS OPÉRATOIRES DES EXPÉRIENCES MENÉES DANS LE MONTAGE À COLONNE DE QUARTZ (cône 20°)

Expériences	Débit de gaz (SLPM)	Puissance (kW)	Matériel granuleux (Al_2O_3 , α Grit 30)		
			Procédure de charge	Charge totale (g)	Hauteur statique du lit (cm)
Exp. 1 et 2	10	12	par incrément de 100 g	1 700	26
Exp. 3 et 4	20	13	par incrément de 100 g	3 200	32.7

La hauteur statique du lit est déduite de la masse de solide chargée en utilisant les équations données en Annexe A2-1. Au cours des deux duplicatas pour chacun des débits, on a obtenu la même charge totale maximale. L'évolution de la perte de charge est donnée en figure 2.13 pour les expériences 1 et 2 et en figure 2.14 pour les expériences 3 et 4.

Au cours des deux duplicatas pour chacun des débits, l'évolution de la perte de charge est similaire. La perte de charge au minimum de soufflage Δp_{ms} est de 6.5 - 7 mb pour les expériences 1 et 2 (10 SLPM) et de 7 - 8 mb pour les expériences 3 et 4 (20 SLPM).

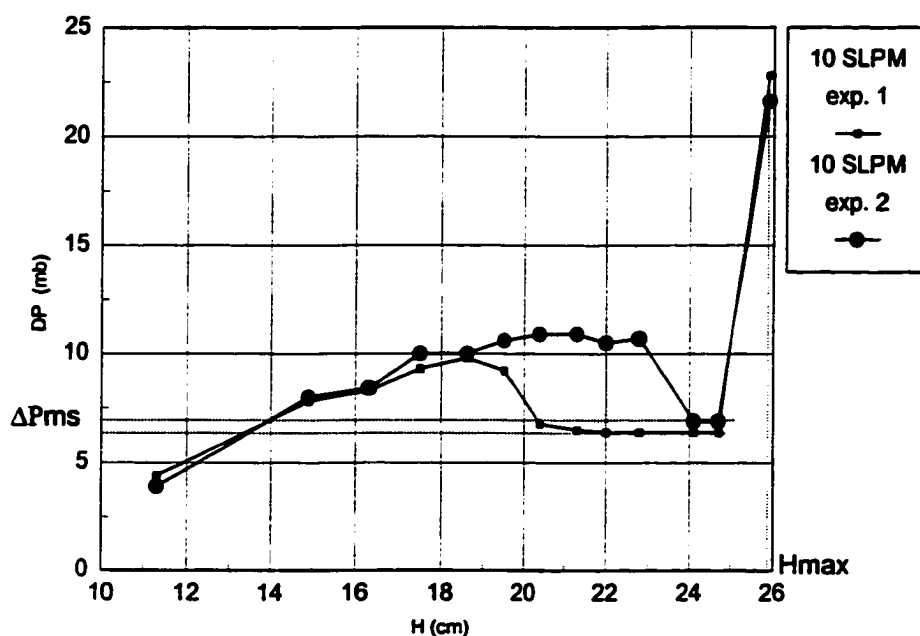


Figure 2.13 Évolution de la perte de charge à travers le lit en fonction de la charge du solide dans le réacteur (exprimée en hauteur de lit) pour les expériences 1 et 2.

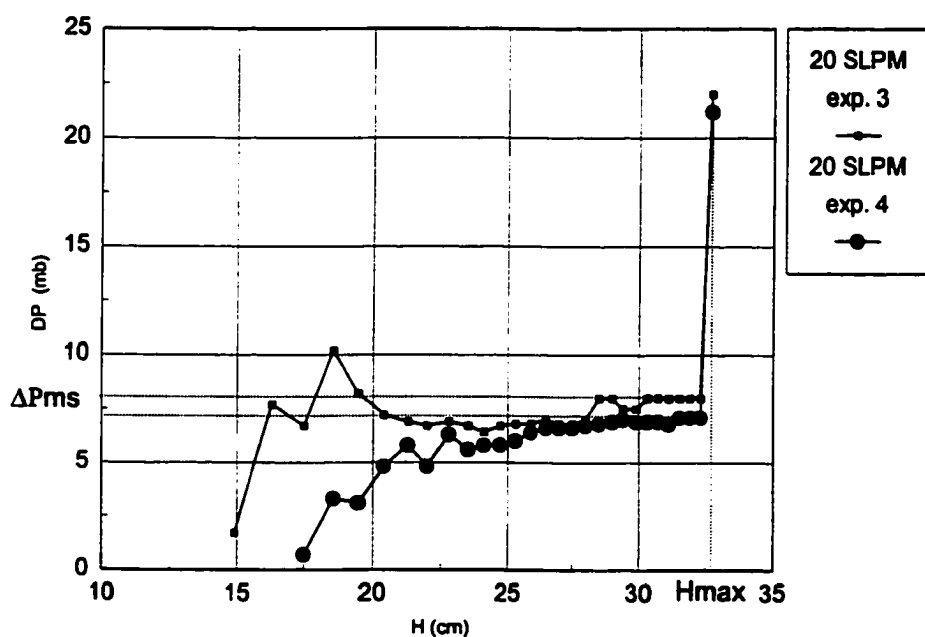


Figure 2.14 Évolution de la perte de charge à travers le lit en fonction de la charge du solide dans le réacteur (exprimée en hauteur de lit) pour les expériences 3 et 4.

L'aspect du lit au cours des expériences effectuées avec Al_2O_3 Grit 30, avant extinction du jet (zone où la perte de charge est constante) est décrit en figure 2.15.

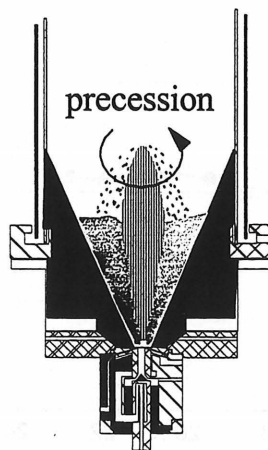


Figure 2.15 Aspect du lit observé au cours des expériences avec Al_2O_3 Grit 30.

La fontaine au dessus du lit est dense et bien définie. Le régime hydrodynamique est de type lit soufflé cohérent et stable. En outre, la fontaine est en mouvement de précession continu autour de son axe. Ce mouvement de précession est dû à la nature du jet de plasma: l'injection du gaz dans la torche a une composante tangentielle contribuant à la création d'un jet tourbillonnant.

Les profils de température mesurés au cours de l'expérience 4 (débit de gaz 20 SLPM) sont représentés en figure 2.16.

La température mesurée dans le lit est comprise entre 425 et 700°C. Le gradient de température est moins important que dans la configuration de base précédente (illustrée en figure 2.11.a). En outre la température dans le lit est qualitativement plus élevée pour des conditions opératoires similaires. La circulation et le mixage dans le lit est meilleure avec la nouvelle configuration de la base à angle de cône 20°.

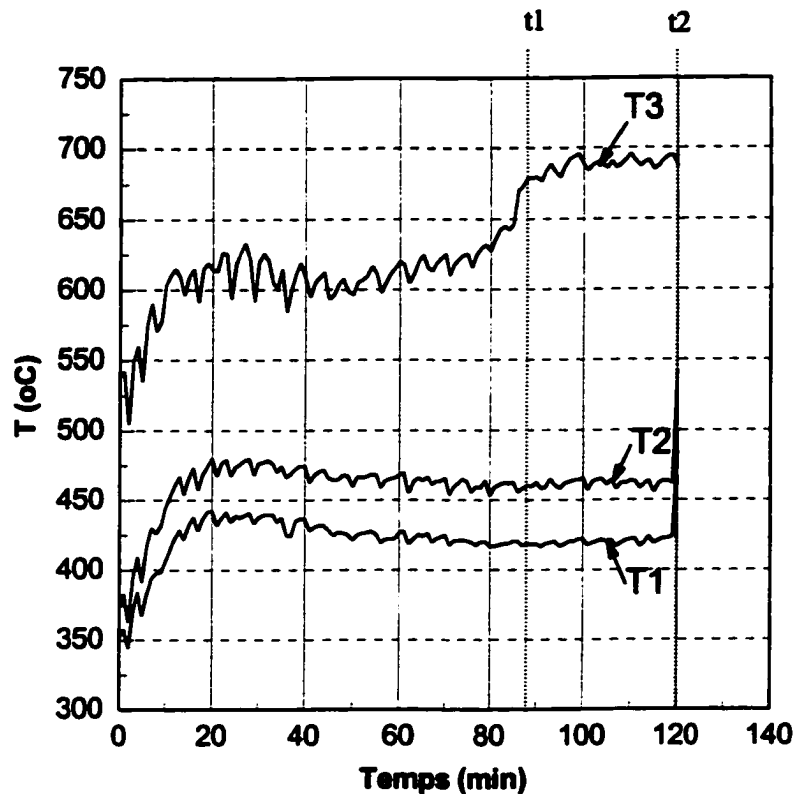


Figure 2.16 Profils de température mesurée dans le lit au cours de l'expérience 4. La position des thermocouples est donnée en figure 2.12 .
 Au temps t_1 , le thermocouple T_3 plonge dans le lit.
 Au temps t_2 , la charge maximale est atteinte et il y a extinction du jet.

Expériences avec Al_2O_3 Grit 60 ($dp_{moyen} = 262 \mu m$)

Quatre expériences ont été menées en utilisant comme solide granuleux Al_2O_3 Grit 60. Au cours de ces expériences, la valeur du courant est fixée à 250 A et deux valeurs de débits de gaz Ar/ N_2 ont été utilisées: 10 et 20 SLPM avec 20% N_2 . L'expérience est répétée deux fois pour chaque débit. Les conditions opératoires utilisées sont les mêmes que celles utilisées dans le cas de Al_2O_3 Grit 30 pour chacun des débits et rapportées dans le tableau 2.6. La procédure utilisée est la même que précédemment.

Durant les quatre expériences, la charge maximale du solide dans le réacteur n'a pu dépasser 500 g. En effet pour cette taille de particules, une partie du solide reste piégée dans la

partie basse du cône. La densité de flux radial dans cette zone est très élevée et il y a fusion du solide. La forme et la position du morceau de poudre fusionnée récupéré au cours de ces expériences sont illustrés en figure 2.17.

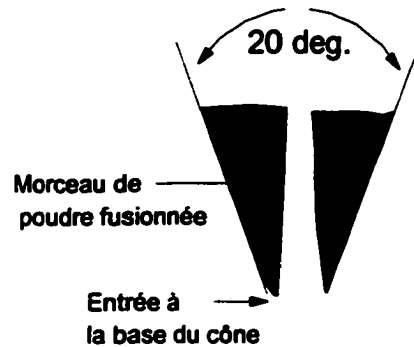


Figure 2.17 Schéma montrant la position et la forme du morceau de poudre fusionnée obtenu au cours des expériences avec Al_2O_3 Grit 60.

Les conclusions après les essais dans le montage à colonne de quartz sont résumées ci-dessous:

- La forme de la base du réacteur a une influence importante sur son comportement hydrodynamique.
- La réduction de la conicité de la base facilite l'entraînement des particules par le jet, améliore la circulation dans le réacteur et permet d'éliminer les zones stagnantes.
- Un angle de cône très réduit (20°) a permis d'obtenir un régime de lit soufflé cohérent avec une bonne circulation dans le lit (estimée à partir de la densité de la fontaine).
- Dans le cas des poudres fines (Al_2O_3 Grit 60), le régime observé est incohérent et instable. L'essai de l'amélioration de la circulation et de l'entraînement des poudres par diminution de l'angle du cône à la base a conduit dans ce cas au piégeage des poudres et à leur fusion à la base du cône.

La procédure utilisée dans les essais avec le cône de graphite 20° qui consiste à augmenter graduellement la charge du réacteur pour une puissance et un débit de gaz fixés a permis de mesurer une grandeur caractéristique du lit soufflé: la hauteur maximale de charge. La mesure est

reproductible et cette méthodologie sera suivie lors de l'étude paramétrique de l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma.

2.4 Étude de l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma DC

Après les conclusions tirées à partir des expériences faites avec les deux montages précédents, un montage d'étude plus complet pour caractériser l'hydrodynamique du réacteur a été réalisé. Il doit permettre entre autre l'étude de l'influence de l'angle du cône sur l'hydrodynamique du réacteur.

2.4.1 Montage expérimental

Le schéma de l'installation est décrit de façon sommaire dans la figure 2.18.

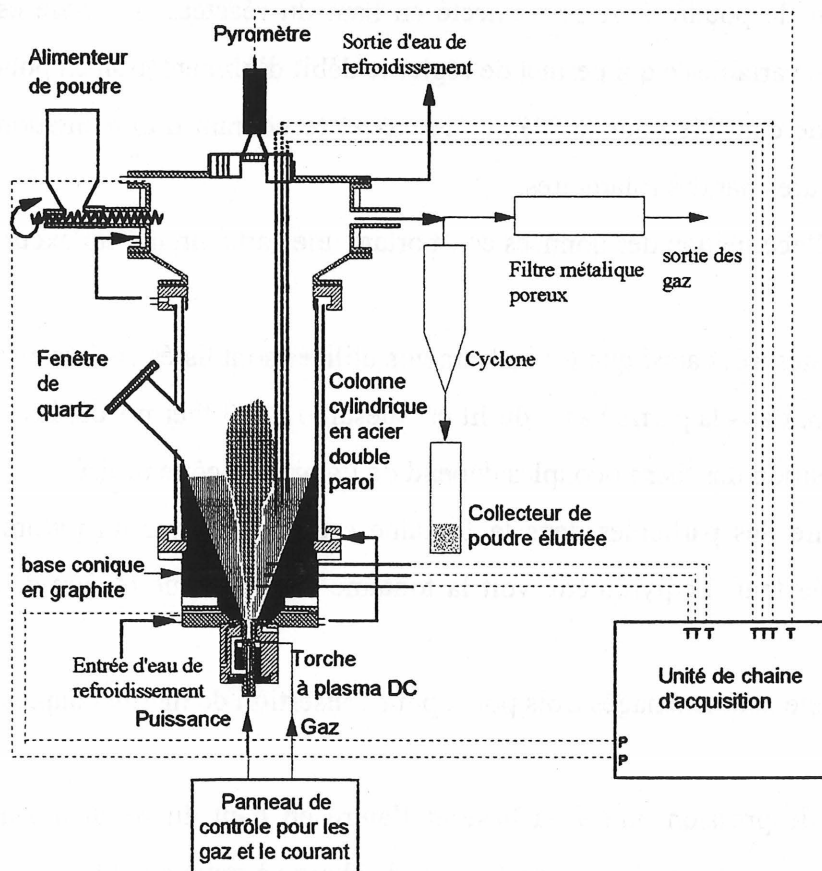


Figure 2.18 Schéma de l'installation utilisée pour l'étude de l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma DC.

Le montage comporte:

- Une torche à plasma DC sertie à la base du réacteur. La torche a été précédemment décrite.
- Une base métallique qui supporte un cône en graphite. Cette base est conçue pour permettre l'utilisation de cônes avec différents angles d'ouverture. Cette partie du réacteur n'est pas refroidie.
- Une colonne cylindrique en acier Inox à double paroi refroidie à l'eau. Le diamètre interne de la colonne est de 143 mm. Sa hauteur est de 500 mm. Une fenêtre de quartz est aménagée dans la colonne pour l'observation. La colonne comporte une expansion en haut pour diminuer la vitesse des gaz et diminuer ainsi l'entraînement des poudres.
- Un circuit de sortie des gaz comprenant un cyclone, un filtre métallique et un collecteur de poudre élutriée.
- Un alimenteur de poudre à visse connecté en haut du réacteur. La visse est entraînée par un moteur à vitesse variable ce qui permet de régler le débit d'alimentation en poudre.
- Un panneau de contrôle pour les débits de gaz et le courant d'alimentation de la torche. Les débits sont mesurés par des rotamètres.
- Un montage d'acquisition des données comportant une carte, un multiplexeur et un ordinateur.

Les grandeurs mesurées ainsi que les instruments utilisés sont listés ci-dessous.

- La température dans la partie basse du lit est mesurée par 3 thermocouples insérés dans la base conique. La position des thermocouples dépend de l'angle du cône utilisé.
- La température des particules dans la fontaine est mesurée par un pyromètre installé sur le couvercle du réacteur. Le pyromètre voit la fontaine à travers une fenêtre de quartz aménagée à cet effet.
- Sur le couvercle sont aménagés trois pores pour l'insertion de thermocouples à partir du haut du réacteur.
- Deux prises de pression: une à la base et l'autre en haut du réacteur sont connectées à un manomètre différentiel pour la mesure de perte de charge à travers le lit.
- La tension d'arc et le courant délivré par l'alimentation sont mesurés de manière précise à l'aide d'un montage électronique incorporé à la chaîne d'acquisition.

- Les débits de gaz sont mesurés par des rotamètres à bille préalablement étalonnés qui sont installés dans le panneau de contrôle.
- Les débits d'eau de refroidissement de la colonne et de la torche sont mesurés par des rotamètres.
- Les températures d'entrée et de sortie de l'eau de refroidissement sont mesurées par des thermistors.

Tous les instruments utilisés sauf les rotamètres délivrent des signaux analogiques et sont connectés à la chaîne d'acquisition qui permet de collecter les différentes mesures en temps réel. Un programme d'acquisition basé sur la programmation par objet (Labview) a été mis au point et les différentes mesures sont stockées dans des fichiers.

2.4.2 Paramètres influents

Les paramètres qui ont une influence sur l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé sont nombreux et peuvent être classés en deux catégories: paramètres géométriques (liés à la conception du réacteur) et paramètres opératoires (liés à la nature du gaz et du solide utilisés ainsi qu'au débit de gaz et à la puissance).

Paramètres géométriques

Les paramètres géométriques sont:

- Le diamètre de la colonne cylindrique D_c .
- Le diamètre d'entrée du gaz à la base du lit D_i .
- L'angle du cône à la base de la colonne α .
- La géométrie de la base à l'entrée du lit.

Paramètres opératoires

Ils sont liés au gaz plasmagène, au solide granuleux et à l'alimentation électrique de la torche.

Les paramètres liés au gaz plasmagène sont :

- La nature du gaz utilisé. En effet, le rendement de la torche, le voltage et la puissance d'alimentation pour un courant fixé dépendent de la nature du gaz plasmagène. De plus pour un

même rendement de la torche, même puissance d'alimentation, et même débit massique de gaz, l'enthalpie spécifique et la température enthalpique du plasma dépendent de la nature du gaz plasmagène. Il en résulte que pour les mêmes conditions de puissance, rendement et débit de gaz, les coefficients de transport dans le jet de plasma (conductivité thermique, viscosité et chaleur spécifique) dépendent de la nature du gaz plasmagène.

- Débit du gaz. Le débit du gaz a une influence sur le voltage pour un courant donné. Il a donc une influence sur la puissance d'alimentation et sur le rendement de la torche. De plus le débit de gaz est un paramètre hydrodynamique important puisque il peut être réglé pour une hauteur de lit donnée de façon à ce que la vitesse superficielle soit supérieure à la vitesse minimale de soufflage.

Les paramètres liés au solide granuleux sont:

- La densité intrinsèque du solide ρ_s .
- La taille et la distribution de taille des particules. On en tient compte par le diamètre moyen des particules d_p .
- La forme des particules. On en tient compte en pondérant le diamètre moyen des particules par un facteur de sphéricité.
- La hauteur statique du lit, qui peut être liée à travers la géométrie du réacteur et la densité du solide en vrac ρ_b à la masse de la charge solide dans le réacteur (voire Annexe A1).

La puissance d'alimentation , qu'on peut contrôler en contrôlant le courant, a une influence sur l'hydrodynamique du lit soufflé par plasma. En effet pour un gaz donné et un débit donné, l'augmentation de la puissance (par augmentation du courant) permet d'une part d'augmenter la vitesse du gaz dans le jet et permet d'autre part d'augmenter la température enthalpique ce qui a une influence sur les coefficients de transport dans le jet de plasma.

2.4.3 Paramètres étudiés

Parmi tous les paramètres influençant l'hydrodynamique cités plus haut, nous avons retenus les paramètres résumés dans le tableau 2.7. Les gammes de variation de ces paramètres sont aussi données dans le même tableau.

TABLEAU 2.7 LISTE ET GAMMES DE VARIATION DES PARAMÈTRES ÉTUDIÉS

Paramètres géométriques	<i>Diamètre de la colonne</i>	<i>Angle du cône</i>	<i>Diamètre de la buse</i>
	143 mm	20°, 40°, 60°	4 - 8 mm
Paramètres liés au solide	<i>Nature</i>	<i>Granulométrie</i>	<i>Densité</i>
	Alumine α (corindon)	0.250-2 mm	3.97 g/cm ³
Paramètres liés au gaz	<i>Nature</i>	<i>Composition</i>	<i>Débit</i>
	Ar/N ₂	0%, 20%N ₂	10 - 50 SLPM
Puissance d'alimentation	<i>Courant</i>	<i>Puissance</i>	
	274, 320A	5 - 22 kW	

Remarques:

- Seules quelques expériences ont été menées avec l'angle de cône de 20°. Il n'a pas été possible de l'adapter à la géométrie de la nouvelle colonne sans changements majeurs. La majorité des résultats concernent donc les angles de cône de 40° et 60°.
- Toutes les expériences ont été menées avec un diamètre de buse de 4 - 5 mm. On s'attend à ce que ce paramètre n'ait pas d'influence. En effet quel que soit le diamètre de la buse utilisé, le diamètre d'entrée du lit est le diamètre de base du cône (10 mm).
- Quelques expériences seulement ont été menées avec l'argon pure. Pour ces expériences le courant est maintenu à 320A. Pour le reste des expériences, un mélange Ar/N₂ à 20%N₂ a été utilisé et pour ces expériences le courant est maintenu à 274 A.

Concernant la taille de solide, six catégories de taille ont été utilisées. Les détails concernant les différentes catégories sont présentés dans le tableau 2.8 ci-dessous.

**TABEAU 2.8 CARACTÉRISTIQUES DES DIFFÉRENTES CATÉGORIES DE
POUDRE UTILISÉES**

Nom commercial	Diamètre min.- diamètre max.	Diamètre moyen (mm)	Densité apparente (g/cm ³)
Alumine Grit 60	$150 \mu\text{m} \leq d_p \leq 425 \mu\text{m}$	0.26	1.98
Alumine Grit 46	$150 \mu\text{m} \leq d_p \leq 595 \mu\text{m}$	0.45	1.98
Alumine Grit 30	$425 \mu\text{m} \leq d_p \leq 1180 \mu\text{m}$	0.74	2.09
Alumine Grit 24	$300 \mu\text{m} \leq d_p \leq 1180 \mu\text{m}$	0.84	2.06
Alumine Grit 20	$425 \mu\text{m} \leq d_p \leq 1680 \mu\text{m}$	0.98	2.14
Alumine Grit 12	$841 \mu\text{m} \leq d_p \leq 3350 \mu\text{m}$	1.64	2.06

Avant d'exposer la méthodologie utilisée pour l'étude de l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma, il est important de définir certaines grandeurs et régimes caractéristiques.

2.4.4 Diagramme des régimes hydrodynamiques du lit soufflé

Pour une géométrie du réacteur donnée, un gaz et un solide donnés, il est possible de tracer un diagramme dans lequel la hauteur statique du lit est représentée en fonction de la vitesse superficielle du gaz ou du débit. L'allure d'un tel diagramme est représentée en figure 2.19.

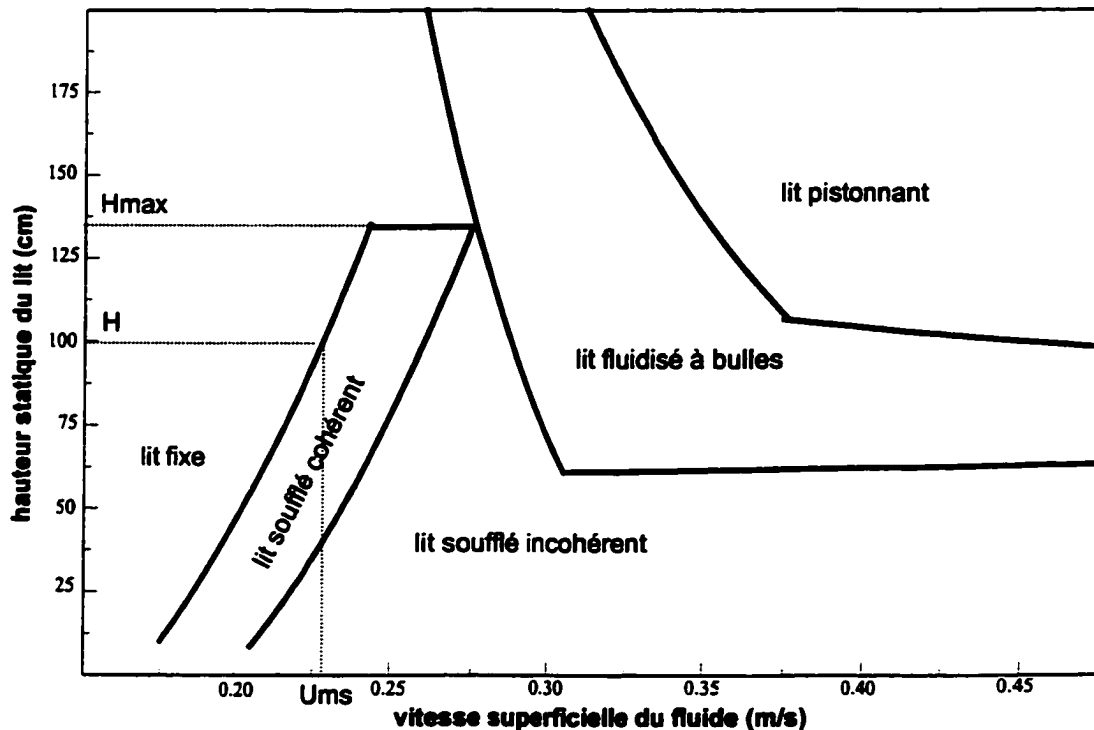


Figure 2.19 Diagramme des régimes du lit soufflé

Les différentes courbes (traits pleins) représentent les limites de transition d'un régime à un autre. Les différents régimes observables sont:

- *Régime de lit soufflé cohérent* pour des débits relativement faibles et pour des hauteurs de lit inférieures à la hauteur maximale de soufflage H_{max} . Ce régime est le plus recherché. Il est caractérisé par un aspect de fontaine au dessus du lit et un mouvement cyclique et régulier du solide. Si les paramètres opératoires sont ajustés pour travailler dans la zone de ce régime hydrodynamique, il est possible de recirculer le solide jusqu'à obtention de la température désirée ou du taux de conversion maximal lors d'une réaction chimique. En outre le mouvement cyclique régulier du solide permet d'opérer aisément le réacteur en continu.
- *Régime de lit soufflé incohérent* pour des débits relativement élevés et pour des hauteurs statiques du lit relativement faibles. Dans ce régime qui est en fait un régime de lit soufflé de moins bonne qualité, l'aspect de la fontaine au dessus du lit n'existe plus mais le mouvement cyclique du solide est maintenu.

- *Régime de fluidisation agrégative* ou à bulles pour des débits et des hauteurs du lit relativement élevés. Dans ce régime le solide est entraîné par paquets. C'est en fait un régime de fluidisation de mauvaise qualité. Ce régime ne présente aucun intérêt.

- *Régime de pistonage* pour des débits de gaz et des hauteurs de lit élevés. Il est favorisé par des colonnes de faible diamètre. Dans ce régime le lit est soulevé par tranches d'où le nom de pistonage "slugging". Ce régime ne présente aucun intérêt.

Remarque:

Il est à noter que le diagramme représenté en figure 2.19 n'est qu'à titre d'illustration. En effet la forme du diagramme dépend des paramètres géométriques (conception du réacteur) ainsi que des caractéristiques du gaz et du solide.

2.4.5 Paramètres hydrodynamiques caractérisant le lit soufflé

Les principaux paramètres hydrodynamiques qui caractérisent le lit soufflé sont: la hauteur maximale de soufflage et la vitesse minimale de soufflage. Ces deux paramètres sont illustrés sur la figure 2.19.

- *La hauteur maximale de soufflage (H_m)* est la hauteur de lit au delà de laquelle il n'est plus possible d'obtenir un régime de lit soufflé quel que soit la valeur du débit. Cette hauteur dépend de la conception du réacteur (paramètres géométriques), des caractéristiques du solide et du gaz.

- *La vitesse minimale de soufflage (U_{ms})* est la vitesse superficielle du gaz qui correspond au débit minimal nécessaire pour maintenir une hauteur de lit donnée en régime de lit soufflé.

2.4.6 Méthodologie

L'objectif de l'étude de l'hydrodynamique est de déterminer le point de transition lit fixe - lit soufflé. En effet lors de l'opération d'un tel réacteur, il est important de savoir le débit minimal nécessaire pour maintenir une charge de solide donnée (de hauteur H) en régime de lit soufflé. Il s'agit donc de déterminer une corrélation qui permet de prédire le débit minimal en fonction de la charge et des autres paramètres liés au solide et à la géométrie du réacteur .

Dans le diagramme de régimes du lit soufflé illustré en figure 2.19, il s'agit de déterminer la courbe de transition lit fixe- lit soufflé.

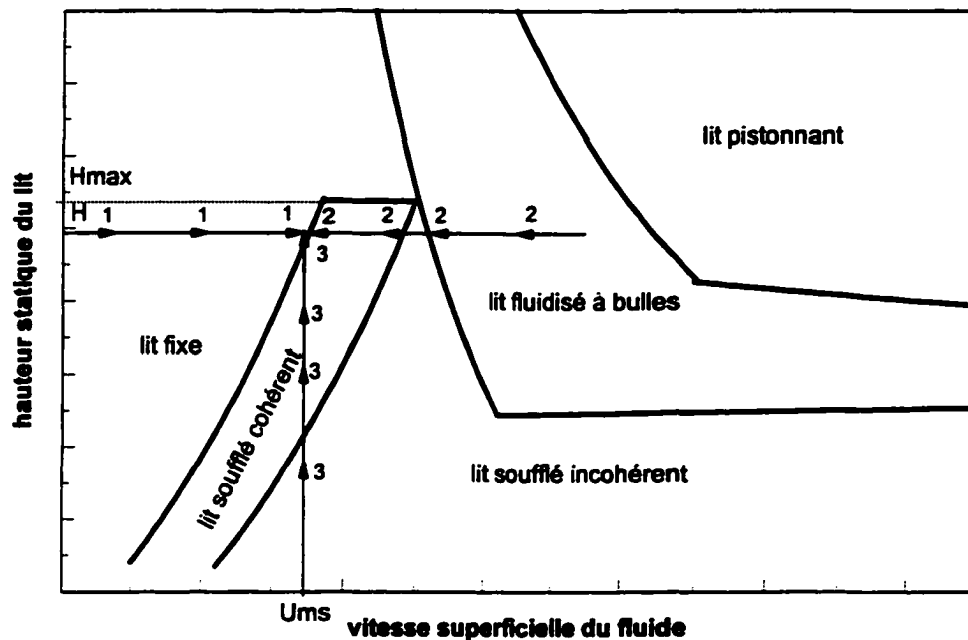


Figure 2.20 Modes d'opération possibles pour la détermination du point de transition: lit fixe - lit soufflé.

En se référant à la figure 2.20, trois modes d'opération sont possibles:

- **Mode 1:** Une masse de solide de hauteur statique H est initialement chargée dans le réacteur. Ensuite le débit de gaz est augmenté jusqu'à obtention d'un lit soufflé. Ce mode d'opération est adopté dans le cas des lits soufflés standard. Il ne convient pas aux lits soufflés opérés sous jet de plasma. En effet, si le jet de plasma est submergé par la charge solide il y a fusion d'une partie de cette charge et blocage du jet.
- **Mode 2:** À haut débit de gaz, on charge une quantité de solide déterminée (de hauteur statique H) dans le réacteur. On diminue ensuite le débit de gaz jusqu'à ce que le jet soit submergé (lit fixe). Le débit de transition est noté. Ce mode opératoire convient au lit soufflé par plasma. Il a été utilisé par Bamrim [BAMRIM et coll., 1992].
- **Mode 3:** On fixe le débit de gaz et on augmente graduellement la charge du solide dans le réacteur. Lorsque le jet de plasma est submergé, le débit fixé correspond au débit minimal pour maintenir la charge de solide en régime de lit soufflé.

Dans ce travail, c'est d'abord le dernier mode opératoire décrit ci-dessus (mode 3) qui a été suivi. Le plan des expériences suivi est de type hiérarchique. Les paramètres géométriques (angle du cône et diamètre de la buse) ainsi que le courant d'alimentation sont fixés. Pour chaque catégorie de poudre, le débit de gaz est fixé et la charge maximale correspondante est mesurée après extinction du jet. La majorité des expériences ont été répétées deux fois.

Le deuxième mode opératoire (mode 2) décrit ci-dessus a ensuite été adopté pour une autre série d'expériences complémentaires. Cette initiative visait à vérifier si les deux modes opératoires conduiraient aux mêmes résultats.

2.4.7 Observation des régimes

Au cours des expériences dans lesquelles le débit de gaz a été fixé et la charge du solide dans le réacteur graduellement augmentée jusqu'à extinction du jet (mode 3), l'aspect du lit a été observé à travers la fenêtre de quartz. Selon la taille des particules deux comportements distincts ont été observés.

Particules de taille $d_p \geq 0.740 \text{ mm}$

Pour les catégories de poudre Al_2O_3 , Grit 30, Grit 24, Grit 20 et Grit 12, l'évolution de l'aspect du lit en fonction de la charge est décrit dans la figure 2.21.

1: Au début de la charge les particules sont projetées en toutes directions par le jet de plasma. L'agitation est intense et les vitesses des particules élevées. Le régime est un régime de lit en phase diluée décrit aussi comme *régime de lit turbulent*. Pendant cette phase l'attrition du solide est sévère.

2: Formation d'une zone annulaire de lit avec une phase diluée de particules au dessus. Un début de structuration est observé avec des particules projetées par le jet dans le centre du réacteur pour retomber ensuite à la surface du lit vers la zone périphérique. Le régime est un *régime de lit soufflé incohérent*.

3: La structuration de la fontaine continue mais le régime peut encore être qualifié de régime de lit soufflé incohérent.

4: La fontaine est bien définie et le mouvement cyclique du solide est régulier. Le régime est un *régime de lit soufflé cohérent*.

5: La hauteur de la fontaine diminue jusqu'à extinction du jet. On obtient alors le *lit fixe*.

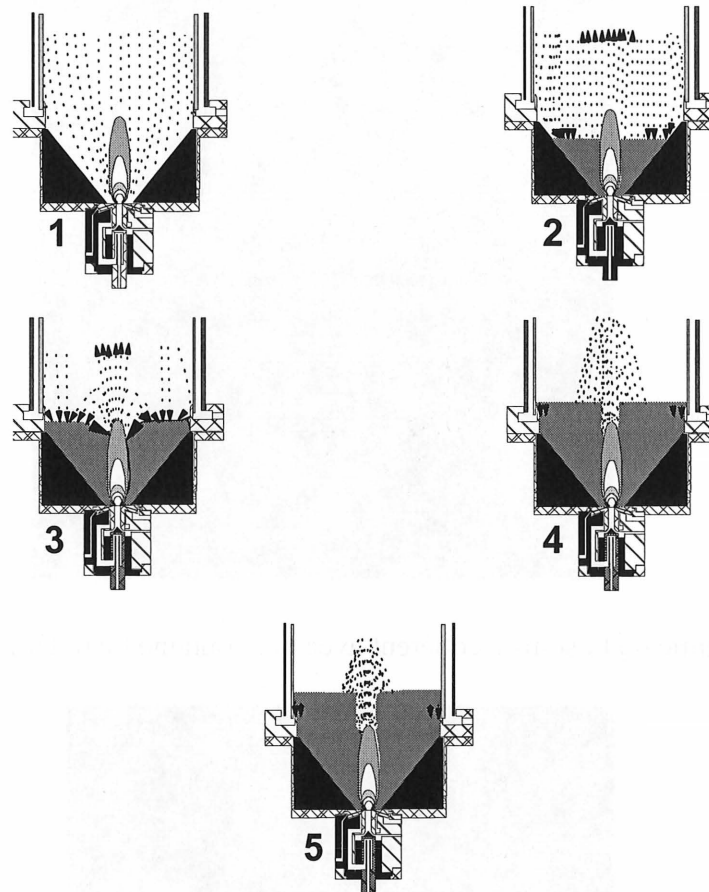


Figure 2.21 Évolution de l'aspect du lit observé pendant l'augmentation graduelle de la charge solide pour les catégories de poudre Al_2O_3 Grit 30, Grit 24, Grit 20 et Grit 12.

Ces observations sont valables aussi bien pour l'angle de cône 40° que pour l'angle de cône 60° .

Il faut noter qu'après extinction du jet, la torche à plasma n'est pas éteinte. L'arrêt de la torche est volontairement actionné. Si on laisse évoluer le système après extinction du jet, on obtient fusion progressive du solide à l'intérieur du réacteur. Ce fait a été vérifié à plusieurs reprises au cours des expériences.

Des photos de l'aspect du lit au cours des expériences, prises à travers la fenêtre de quartz, sont présentées dans les figures 2.22 à 2.25.

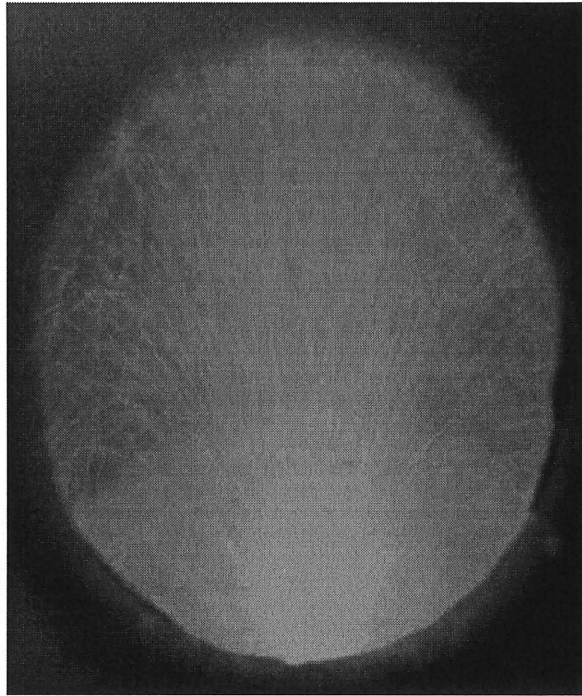


Figure 2.22 Régime de lit soufflé cohérent avec une fontaine bien définie. Al_2O_3 Grit 30.

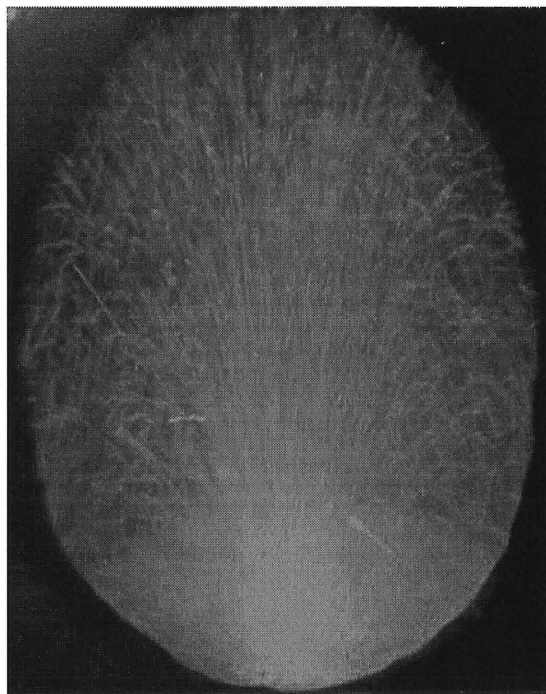


Figure 2.23 Régime de lit soufflé cohérent avec une fontaine bien définie. Al_2O_3 Grit 24.

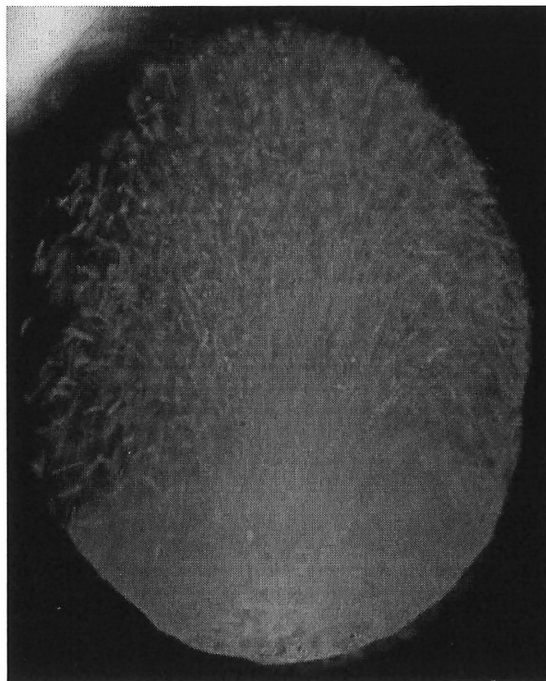
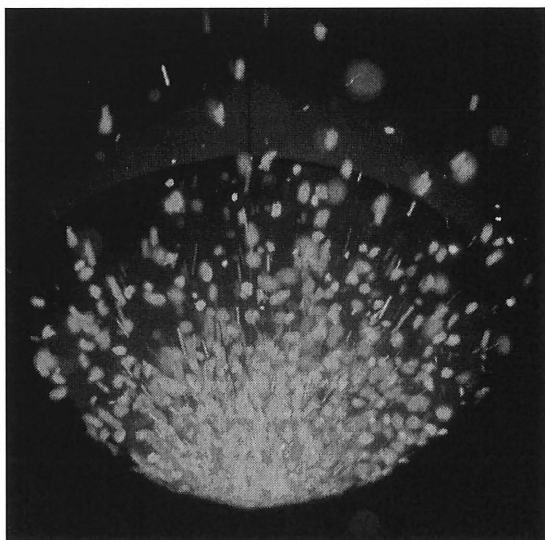
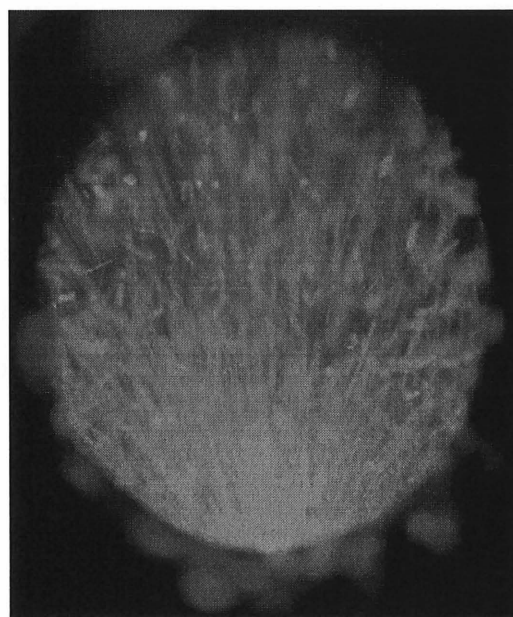


Figure 2.24 Régime de lit soufflé cohérent avec une fontaine bien définie. Al_2O_3 Grit 20.



(a)



(b)

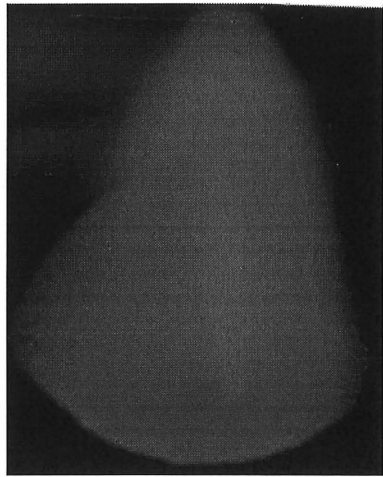
Figure 2.25 Régime de lit soufflé cohérent. Al_2O_3 Grit 12. (a) aspect en début de charge. (b) fontaine au dessus du lit.

Particules de taille $d_p \lesssim 0.450 \text{ mm}$

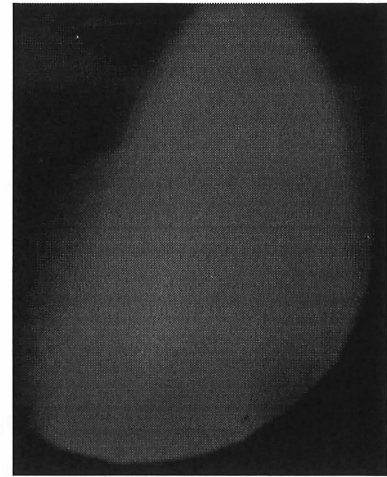
Pour les catégories de poudre de taille fine: Al_2O_3 Grit 46 et Grit 60, l'évolution de l'aspect du lit en fonction de la charge est le même que précédemment décrit jusqu'à l'étape 3 (figure 2.21) ensuite il y a formation d'une fontaine comme à l'étape 4. À partir du moment de formation de la fontaine il y a instabilité du lit. En effet, même si la charge est interrompu, il y a évolution de l'aspect du lit avec fluctuation de la fontaine, déformation de la surface du lit, barbotement incohérent qui finit par une extinction du jet ou réapparition de la fontaine fluctuante. La séquence de cette évolution a été photographiée et présentée en figure 2.26 a- f..

- a. formation de la fontaine, régime de lit soufflé.
- b. début de fluctuation de la fontaine.
- c. rotation du jet avec déformation de la surface du lit.
- d. déformation de la surface du lit, dissymétrie et accumulation des poudres d'un côté du réacteur.
- e. barbotement à la surface du lit.
- f. début d'extinction du jet.

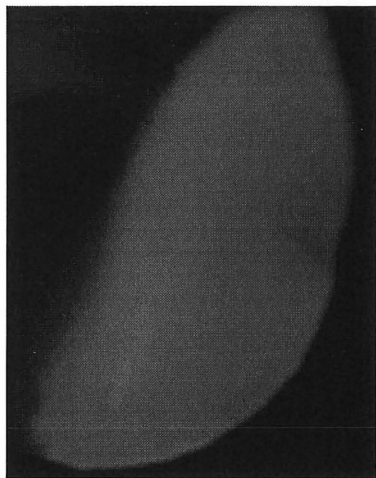
Cette séquence d'événements décrite dans la figure 2.26 est la même pour les différentes conditions opératoires (débit, puissance et angle du cône). On peut en déduire que l'instabilité observée est liée à la taille des particules. Le début des instabilités est imprévisible et la charge maximale mesurée pour un débit et un courant donnés n'est pas reproductible.



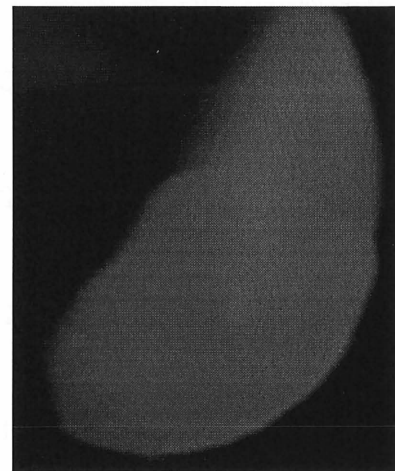
(a)



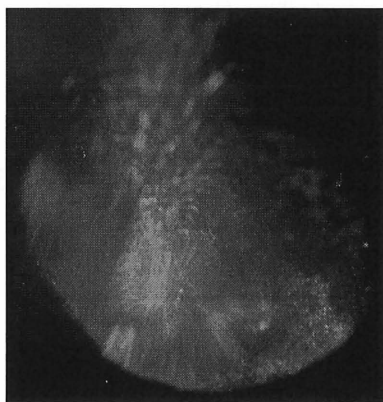
(b)



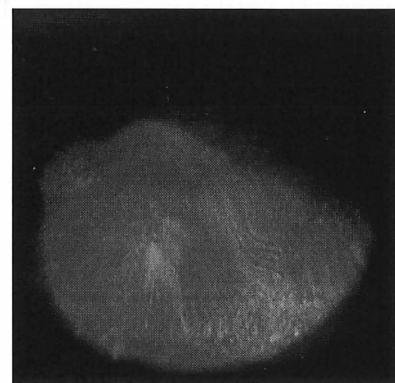
(c)



(d)



(e)



(f)

Figure 2.26 Instabilités dans le régime de lit soufflé pour les particules fines Al_2O_3 Grit 46 et Grit 60.

2.4.8 Hauteur du lit en fonction du débit de gaz

Pour les deux angles de cône 40° et 60°, les résultats concernant les catégories de poudre Al_2O_3 Grit 30, Grit 24, Grit 20 et Grit 12 sont présentés sous forme $H = f(\text{débit})$ dans les figures 2.27 à 2.34. Les valeurs des débits sont les valeurs dans les conditions standard (en SLPM) telles que mesurées par les rotamètres. La valeur du courant est maintenue à 274 ± 5 A et un mélange Ar/N_2 (20% N_2) a été utilisé. Pour les catégories de poudre les plus fines Al_2O_3 Grit 60 et Grit 46, les mesures de charge maximale pour une valeur de courant donnée et un débit de gaz fixé n'ont pas été reproductibles. Le comportement hydrodynamique lors de l'utilisation de ces poudres a été décrit dans la section précédente.

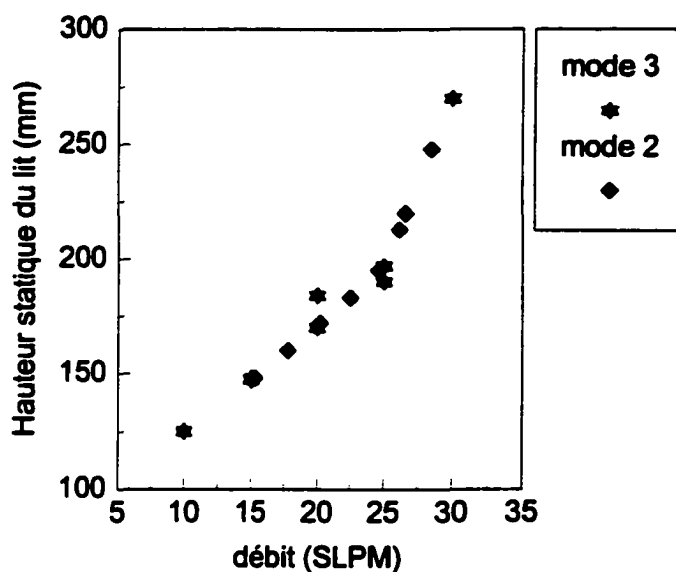


Figure 2.27 Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30 ($d_p = 0.74$ mm) et angle du cône 60°.

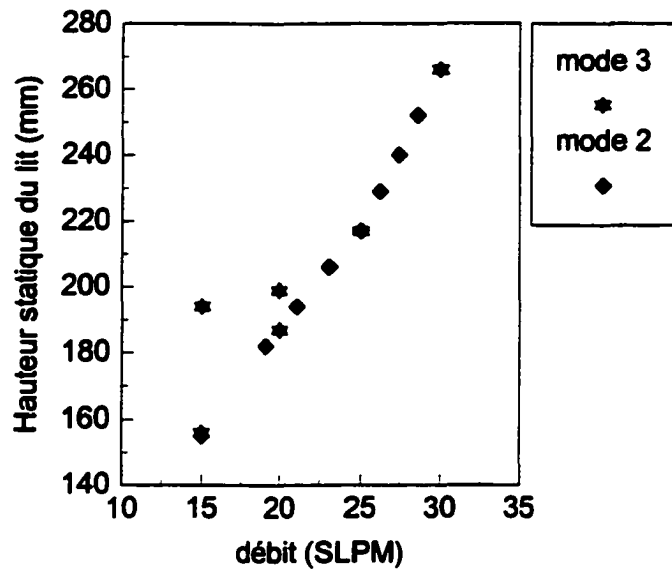


Figure 2.28 Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30 ($d_p = 0.74 \text{ mm}$) et angle du cône 40° .

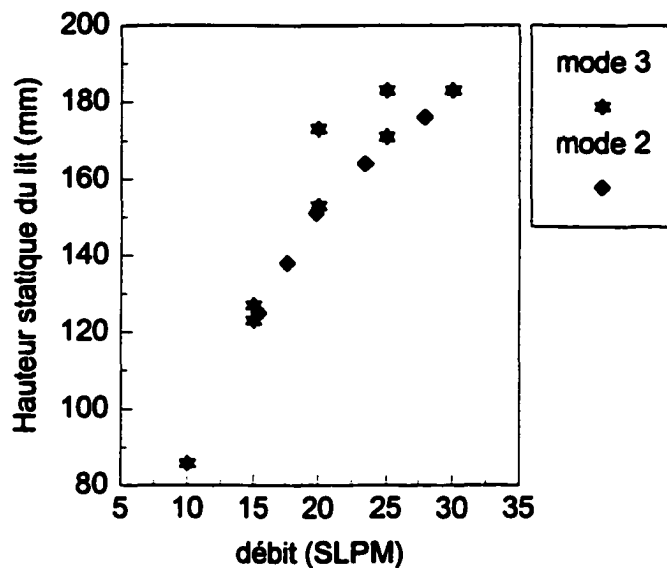


Figure 2.29 Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 24 ($d_p = 0.84 \text{ mm}$) et angle du cône 60° .

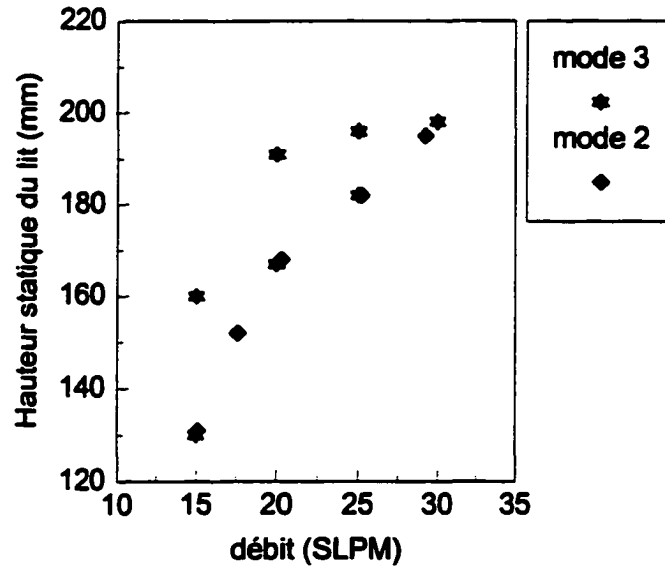


Figure 2.30 Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 24 ($d_p = 0.84 \text{ mm}$) et angle du cône 40° .

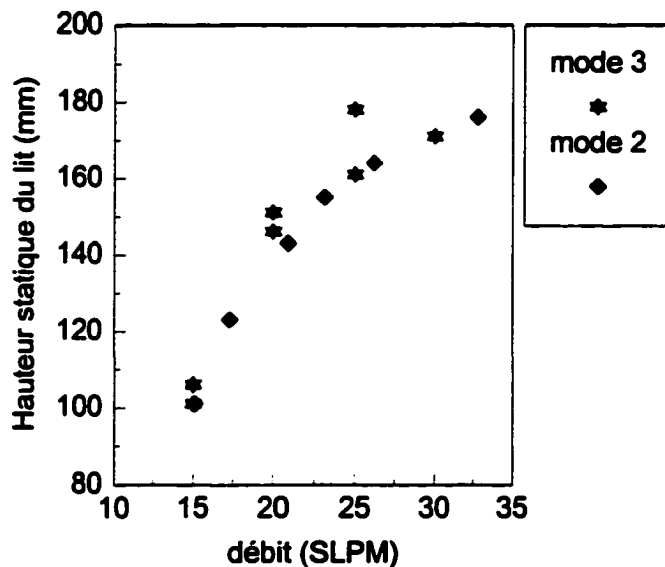


Figure 2.31 Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 20 ($d_p = 0.98 \text{ mm}$) et angle du cône 60° .

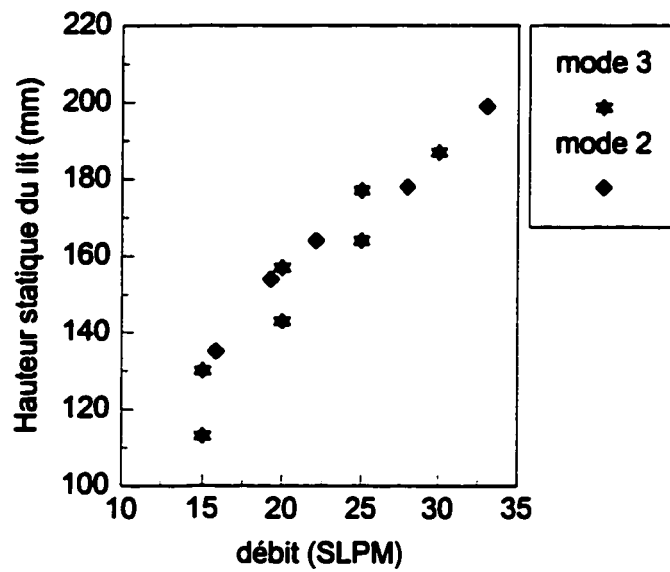


Figure 2.32 Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 20 ($d_p = 0.98 \text{ mm}$) et angle du cône 40° .

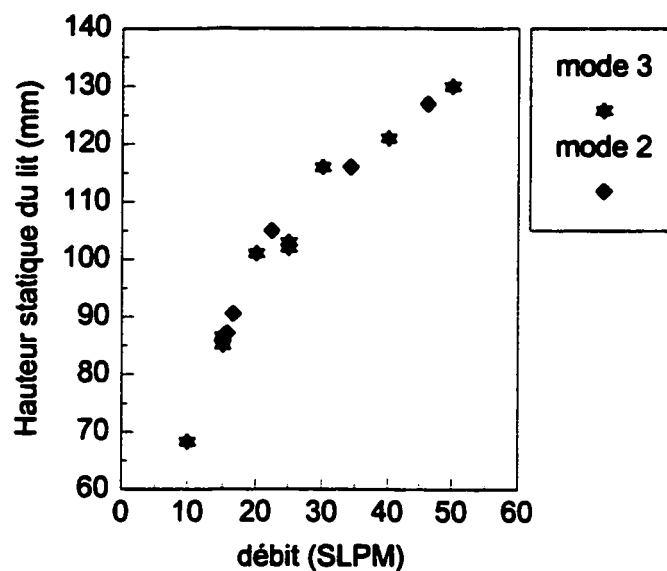


Figure 2.33 Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 12 ($d_p = 1.64 \text{ mm}$) et angle du cône 60° .

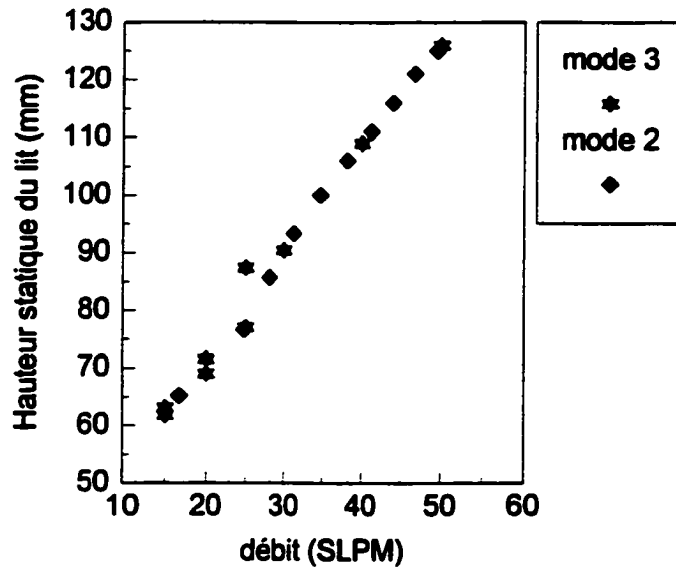


Figure 2.34 Hauteur statique du lit en fonction du débit de gaz (SLPM) pour les deux modes d'opération 3 et 2, catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 12 ($d_p = 1.64 \text{ mm}$) et angle du cône 40° .

L'analyse de ces figures permet de tirer les conclusions suivantes:

- Les deux modes d'opération utilisés: mode 2 et mode 3 (décrits plus haut) sont concordants.
 - La hauteur de charge maximale pour un courant et un débit de gaz donnés diminue lorsque la taille des particules augmente.
 - La hauteur de charge maximale pour un courant et un débit de gaz fixés augmente avec le débit de gaz. Cependant la représentation hauteur de lit en fonction du débit de gaz, exprimé en SLPM, n'est pas satisfaisante car cette représentation masque l'effet de la puissance. En effet comme montré dans le tableau 2.9, pour un courant fixé la puissance dissipée dans l'arc augmente avec l'augmentation du débit de gaz. Le rendement de la torche varie aussi avec le débit de gaz.
- Les valeurs données dans le tableau 2.9 sont les valeurs moyennes mesurées au cours de chaque expérience. Les relations entre le débit, le voltage, la puissance et le rendement de la torche sont discutées plus en détail dans le chapitre 3 (transfert de chaleur dans le réacteur).

TABEAU 2.9 CONDITIONS ÉNERGÉTIQUES POUR CHAQUE DÉBIT DE GAZ UTILISÉ DANS LES FIGURES 2.27 À 2.34.

Débit de gaz (SLPM)	I (A)	V (V)	P (kW)	Rendement énergétique de la torche	T _r (K)	U _i (m/s)
10	271	47.7	12.9	0.35	11 537	579
15	269	51.5	13.8	0.42	10 821	788
20	270	52.9	14.3	0.44	9 636	905
25	274	56.8	15.6	0.48	9 203	1 074
30	278	59.2	16.5	0.49	5 841	1 189
35	274	62.7	17.2	0.51	8 143	1 318
40	272	66.2	18	0.53	7 933	1 463
45	275	69.2	19	0.54	7 765	1 608
50	275	72.3	19.9	0.55	7 657	1 759

Dans le tableau 2.9, T_r est la température enthalpique moyenne du plasma à la sortie de la buse et U_i est la vitesse moyenne du jet à la sortie de la buse.

2.4.9 Vitesse minimale de soufflage

La vitesse du gaz en fût vide, U, est appelée vitesse superficielle. Elle est reliée au débit massique du gaz \dot{m}_g par:

$$U = \frac{\dot{m}_g}{\rho_f S} \quad (2.2)$$

Où S est l'aire de la section du lit normale à l'écoulement et ρ_f la masse volumique du gaz.

La vitesse minimale de soufflage est la vitesse superficielle du gaz correspondant au débit minimal de soufflage: débit minimal de gaz nécessaire pour maintenir une charge solide à l'état soufflé. Elle est notée U_{ms} et peut être rapportée soit au diamètre de la colonne D_c, soit au diamètre à la surface du lit D_b ou au diamètre de l'entrée du lit D_e.

Dans notre cas, il paraît plus avantageux de définir U_{ms} par rapport au diamètre de sortie de la buse D_i (diamètre de l'injecteur). En effet, les conditions à l'entrée peuvent être facilement calculées alors que le diamètre à la surface du lit dépend de la charge solide (zone conique) et la température dans les différentes sections est difficilement calculable à cause des gradients de température dans le lit.

L'équation 2.2 est utilisée pour le calcul de U_m . \dot{m}_g est déduit du débit volumique du gaz mesuré par les rotamètres dans les conditions standard Q_{vST} .

$$\dot{m}_g = Q_{vST} \cdot \rho_{ST} \quad (2.3)$$

où ρ_{ST} est la masse volumique du gaz dans les conditions standard ($p = 1 \text{ atm}$, $T = 298 \text{ K}$).

ρ_f est calculé à la température enthalpique moyenne du plasma à la sortie de la buse, T_f . Cette dernière est calculée à partir de l'enthalpie spécifique du jet de plasma à la sortie de la buse h . L'enthalpie spécifique du plasma est calculée à partir de la puissance électrique dissipée dans l'arc, P , et du rendement de la torche, η , lequel est déduit du bilan calorimétrique sur la torche comme expliqué au chapitre 3. Les relations utilisées sont:

$$h = \frac{\eta \cdot P}{\dot{m}_g} \quad (2.4)$$

$$T_f = f(h) \quad (2.5)$$

La relation (2.5) n'existe pas sous forme analytique. Les tables de données pour les différents gaz notamment rapportées par Boulos [BOULOS et coll. 1994] ont été utilisées. Un programme d'interpolation permet de calculer T_f à partir de l'enthalpie spécifique déduite de l'équation (2.4). Connaissant T_f , les autres données relatives au gaz à la sortie de la buse: coefficients de transport et densité sont calculées par une procédure similaire.

La vitesse minimale de soufflage référée à la sortie de la buse, s'écrit donc:

$$U_{ms}^i = \frac{\dot{m}_g}{\rho_f(T_f) S_i} \quad (2.6)$$

Où S_i est la section de la buse $S_i = \pi \frac{D_i^2}{4}$.

2.4.10 Corrélations antérieures

La littérature est riche en corrélations reliant la vitesse minimale de soufflage aux autres paramètres dont dépend l'hydrodynamique du lit soufflé: diamètre à l'entrée du lit, diamètre de la colonne, diamètre moyen des particules, densités du solide et du gaz, Cependant, la validité des différentes corrélations est limitée aux domaines de variation des paramètres testés. D'autre part, comme discuté au chapitre 1, les auteurs ayant étudié l'effet de la température sur la vitesse minimale de soufflage ([WU et coll., 1987] et [YE et coll., 1992]) ont noté des divergences entre

les prédictions des corrélations établies à basse température pour le lit soufflé et leurs mesures à des températures plus élevées.

Dans la recherche d'une corrélation qui permettrait de représenter correctement les résultats obtenus au cours de cette étude, plusieurs corrélations ont été sélectionnées. Elles sont rapportées dans le tableau 2.10.

TABLEAU 2.10 CORRÉLATIONS TESTÉES

Type de géométrie	Équations	Auteurs (référence)
Cylindrique	$U_{ms} = \left(\frac{d_p}{D_c}\right) \left(\frac{D_i}{D_c}\right)^{\frac{1}{3}} [2gH(\rho_s - \rho_f)/\rho_f]^{\frac{1}{2}}$ (1.1)	MATHUR et coll., 1955
Conique	$Re_{pms} = 0.174 Ar^{0.5} \left(\frac{D_b}{D_i}\right)^{0.85} \left[\tan\left(\frac{\alpha}{2}\right)\right]^{-1.25}$ (2.7)	GORSHTAIN et coll., 1964
Conique - cylindrique	$U_{ms}^i = \left[\frac{\mu}{(d_p \rho_f)}\right] \left[0.072 \left(\frac{F_D}{F_G}\right)_{ms} Ar\right]^{0.714}$ (2.8) avec $\left(\frac{F_D}{F_G}\right)_{ms} = 0.0485 \varepsilon_{ms}^{3.1} \left(\frac{H}{D_c}\right)^{2.15} a$	KMIEC, 1977
Générale	$U_{ms}^i = 0.0084 \left(\frac{H}{D_i}\right) \left[\frac{(d_p \rho_s)}{D_i \rho_f}\right]^{0.35} + 5.2 \right)^{2.5} a^{0.5} D_i^{0.5}$ (2.9)	MERRY, 1975
Conique - cylindrique	$St_{ms} = 4.84 \cdot 10^{-4} Ar^{0.53} \left[\frac{D_i}{D_c}\right]^{0.09} \left[\frac{H}{D_c}\right]^{0.22} \left[\frac{\rho_s d_p}{\rho_f D_i}\right]^{0.9} \left[\frac{\rho_F}{\rho_\infty}\right] \left[\frac{v_\infty}{v_F}\right]^{0.15}$ (1.6)	BAMRIM et coll., 1992

Dans l'équation (2.8), le terme $\left(\frac{F_D}{F_G}\right)_{ms}$ est le rapport de la force de traînée à la force de gravité au minimum de soufflage calculé par KMIEC en fonction de la porosité du lit au minimum de soufflage ε_{ms} , de la hauteur du lit, du diamètre de la colonne et de l'angle d'ouverture du cône.

Dans l'équation (2.7), D_b est le diamètre calculé à la surface du lit, il est relié à l'angle d'ouverture du cône α , à la hauteur H du lit et au diamètre à l'entrée du cône D_0 par:

$$D_b = D_0 + 2H \tan(\alpha/2).$$

Le choix des corrélations (1.1), (2.7), (2.8) et (2.9) est basé sur la sélection faite par Olzar [OLZAR et coll., 1992] qui a analysé un certain nombre de corrélations pour la vitesse minimale de soufflage applicables pour différentes géométries et pour une large gamme de variation des paramètres impliqués. Le niveau atteint par la surface libre du lit au cours de la présente étude est restreint à la zone conique pour les faibles charges notamment pour la catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 12 ($d_p = 1.64 \text{ mm}$) mais s'étend aussi à la zone cylindrique pour des charges plus élevées notamment pour la catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30 ($d_p = 0.74 \text{ mm}$) ce qui justifie le test de corrélations établies aussi bien pour des géométries coniques que cylindriques. La corrélation de Merry (2.9) établie pour la hauteur de pénétration d'un jet fluide dans un lit de poudre est à caractère général et donc applicable pour toute géométrie. La corrélation (1.6) est la seule qui été établie à notre connaissance pour un réacteur à lit soufflé par plasma.

Les résultats de mesure de la hauteur du lit en fonction des autres paramètres (121 points de mesure) obtenus au cours de la présente étude ont été lissés à l'aide des corrélations présentées au tableau 2.10. par la méthode de régression multiple basée sur la minimisation des écarts quadratiques (moindres carrés).

Le lissage optimal par les équations de KMIEC (2.8) et par l'équation de MERRY (2.9) n'a pas été concluant. Les coefficients de régression obtenues pour ces deux équations sont respectivement de 0.63 et 0.32. Le lissage optimal par l'équation de MATHUR (1.1) n'a pas été concluant non plus et le coefficient de régression obtenu dans ce cas est de 0.25. Cependant, lorsque cette équation a été modifiée afin de faire apparaître le nombre de Reynolds et d'inclure la viscosité du gaz dans la corrélation (non incluse dans (1.1)), le lissage optimal a été concluant ($R^2 = 0.80$). La corrélation de GORSTEIN (2.7) a aussi été concluante ($R^2 = 0.88$). Les résultats des tests des équations qui ont été concluants ainsi que les corrélations obtenues sont résumés dans le tableau 2.11.

L'équation due à Bamrim et Flamant (1.6), qui a été établie pour le réacteur à lit soufflé par plasma est la plus concluante ($R^2 = 0.96$). L'équation (2.12) obtenue à la base de l'équation (1.6) permet le meilleur lissage des résultats obtenus au cours de la présente étude. Le terme $\left[\frac{D_i}{D_c} \right]^{0.09}$ a été gardé inchangé car il ne varie pas au cours des expériences effectuées. Le coefficient

TABLEAU 2.11 RÉSULTATS DU TEST DES CORRÉLATIONS ET ÉQUATIONS OBTENUES

Formes lissées et équations obtenues		Coefficient de régression R^2	Écart relatif absolu moyen	Écart relatif maximal	% des résultats à $\pm 20\%$ d'écart relatif
Forme lissée	$Re_{pms} = \left(\frac{D_i}{D_c}\right)^{-\frac{5}{3}} \left(\frac{d_p}{D_c}\right) \left[2gH \frac{(\rho_s - \rho_f)}{\rho_f}\right]^{\frac{1}{2}} \left(\frac{\rho_f d_p}{\mu}\right)$ (1.1), modifiée				
Équation obtenue	$Re_{pms} = \left(\frac{D_i}{D_c}\right)^{-\frac{5}{3}} \left(\frac{d_p}{D_c}\right)^{0.84} \left[2gH \frac{(\rho_s - \rho_f)}{\rho_f}\right]^{-0.6} \left(\frac{\rho_f d_p}{\mu}\right)^{0.8}$ (2.10)	0.80	0.27	$\pm 90\%$	60 %
Forme lissée	$Re_{pms} = 0.174 Ar^{0.5} \left(\frac{D_b}{D_i}\right)^{0.85} \left[\tan\left(\frac{a}{2}\right)\right]^{-1.25}$ (2.7)				
Équation obtenue	$Re_{pms} = 1.48 Ar^{0.5} \left(\frac{D_b}{D_i}\right)^{0.82} \left[\tan\left(\frac{a}{2}\right)\right]^{-0.36}$ (2.11)	0.88	0.19	$\pm 70\%$	62%
Forme lissée	$St_{ms} = 4.84 \cdot 10^{-4} Ar^{0.53} \left[\frac{D_i}{D_c}\right]^{0.09} \left[\frac{H}{D_c}\right]^{0.22} \left[\frac{\rho_s d_p}{\rho_f D_i}\right]^{0.9} \left[\frac{\rho_F}{\rho_\infty}\right] \left[\frac{v_\infty}{v_F}\right]^{0.15}$ (1.6)				
Équation obtenue	$St_{ms} = 1.38 Ar^{0.69} \left[\frac{D_i}{D_c}\right]^{0.09} \left[\frac{H}{D_c}\right]^{1.15} \left[\frac{\rho_s d_p}{\rho_f D_i}\right]^{1.07} \left[\frac{\rho_F}{\rho_\infty}\right] \left[\frac{v_\infty}{v_F}\right]^{0.15}$ (2.12)	0.96	0.12	$\pm 60\%$	76%

$\left[\frac{\rho_F}{\rho_\infty} \right] \left[\frac{v_\infty}{v_F} \right]^{0.15}$ a aussi été conservé puisqu'il a été introduit par les auteurs comme facteur correctif suggéré par d'autres études [BAMRIM et coll., 1992]. Pour les autres termes sur lesquels le lissage a porté, les exposants obtenus après lissage optimal ainsi que la constante ne sont pas les mêmes que dans l'équation (1.6) (voir équation 2.12 au tableau 2.11). À priori l'équation (2.12) serait suffisante pour représenter les résultats de cette étude dans la gamme des paramètres testés. Cependant cette équation qui utilise des termes calculés à la température du film définie par les auteurs par : $(T_F = \frac{T_b + T_\infty}{2})$ où T_b est la température moyenne du lit) et d'autres termes calculés à la température enthalpique moyenne du plasma à la sortie de l'anode T_∞ , serait d'usage ardu. En effet, l'évaluation de la température moyenne du lit n'est pas aisée. À l'exception d'un réacteur à lit soufflé par plasma en régime permanent et parfaitement adiabatique, il existe toujours des gradients de température importants dans le lit (voire chapitre 3).

Il serait donc intéressant de mener une analyse dimensionnelle pour établir des corrélations d'usage plus facile et où tous les paramètres sont calculés à la température enthalpique moyenne du plasma à la sortie de l'anode (entrée du lit). Les conditions à l'entrée du lit sont plus faciles à calculer et à contrôler. Cette approche est conforme aux conclusions de la première étude de Flamant [FLAMANT, 1990a].

2.4.11 Analyse dimensionnelle

Dans la recherche d'une relation fonctionnelle reliant la vitesse minimale de soufflage aux autres paramètres du système, une des étapes importantes est de pouvoir dresser une liste complète de tous les paramètres primaires susceptibles d'intervenir dans cette relation.

la géométrie du réacteur est complètement décrite par les paramètres:

- angle du cône α
- diamètre de la colonne D_c
- diamètre de l'injecteur D_i

Les caractéristiques du solide sont décrites par sa densité ρ_s et le diamètre moyen réciproque des particules d_p calculé à partir de l'équation (2.1).

Le gaz est caractérisé par sa densité ρ_f et sa viscosité μ .

Les autres paramètres moins évidents sont: la hauteur statique du lit H et l'accélération de la pesanteur g.

Ces deux derniers paramètres sont justifiés par le fait qu'une particule qui démarre au repos à la base du jet doit acquérir une vitesse $U_p = \sqrt{2gL}$ pour atteindre la hauteur L qui est égale à la hauteur statique du lit H au minimum de soufflage. La même considération a été utilisée par [GHOSH, 1965] pour apporter un support théorique à la corrélation de Mathur et Gishler (Équation 1.1 , chapitre 1). Pour notre analyse dimensionnelle, les deux termes g et H sont pris séparément, la densité du solide interviendra sous forme ($\rho_s - \rho_f$).

La relation fonctionnelle qui lie U_{ms}^i aux autres paramètres est:

$$U_{ms}^i = f(D_i, D_c, H, d_p, \rho_s - \rho_f, \rho_f, \mu, tg(\frac{\alpha}{2}), g) \quad (2.13)$$

L'application du theoreme Pi de Buckingham [MUNSEN et coll., 1994] montre qu'il faut sept groupes adimensionnels pour décrire la relation fonctionnelle (2.13). Les groupes adimensionnels ont été déterminés par la méthode des variables répétées décrite dans [MUNSEN et coll., 1994].

Ces groupes sont listés ci-dessous:

$$\pi_1 = Re_{pms} = \frac{\rho_f d_p U_{ms}^i}{\mu} \quad \text{nombre de Reynolds au minimum de soufflage référé au diamètre moyen des particules } d_p$$

$$\pi_2 = Ar = \frac{g d_p^3 \rho_f (\rho_s - \rho_f)}{\mu^2} \quad \text{nombre d'Archimède, appelé aussi nombre de Galilée.}$$

$$\pi_3 = \frac{Di}{d_p}$$

$$\pi_4 = \frac{H}{d_p}$$

$$\pi_5 = \frac{Di}{D_c}$$

$$\pi_6 = \frac{\rho_s - \rho_f}{\rho_f}$$

$$\pi_7 = tg(\alpha/2)$$

La relation fonctionnelle peut être exprimée à l'aide des groupes adimensionnels décrits ci-dessus par:

$$\Psi(\pi_1, \pi_2, \pi_3, \pi_4, \pi_5, \pi_6, \pi_7) = 0 \quad (2.14)$$

Il faut noter que le choix des groupes adimensionnels n'est pas unique et on peut remplacer les groupes définis ci-haut par toutes autres combinaisons de ceux ci.

2.4.12 Corrélations proposées

Le théorème Pi ne permet pas de déterminer la forme de la relation Ψ liant les différents groupes addimensionnels. Les points expérimentaux obtenus au cours des 121 essais ont été corrélés à l'aide de deux corrélations: une qui exprime le nombre de Reynolds, Re_{pms} , en fonction des autres groupes adimensionnels (2.15) et l'autre qui exprime H/d_p (π_4) en fonction des autres groupes adimensionnels (2.16).

$$Re_{pms} = \left(\frac{H}{d_p}\right)^a Ar^b \left(\frac{\rho_s - \rho_f}{\rho_f}\right)^c \left(\frac{D_i}{d_p}\right)^d (tg(a/2))^e \left(\frac{D_i}{D_c}\right)^f \quad (2.15)$$

$$\frac{H}{d_p} = (Re_{pms})^{a'} Ar^{b'} \left(\frac{\rho_s - \rho_f}{\rho_f}\right)^{c'} \left(\frac{D_i}{d_p}\right)^{d'} (tg(a/2))^{e'} \left(\frac{D_i}{D_c}\right)^{f'} \quad (2.16)$$

La corrélation (2.15) est utile pour déterminer la vitesse minimale de soufflage (débit minimal de gaz à utiliser) pour une hauteur statique du lit donnée (une charge solide donnée), une fois la taille de la poudre connue et les conditions énergétiques d'opération de la torche fixées.

La corrélation (2.16) est utile pour déterminer la hauteur de lit maximale (charge de solide maximale) qui serait maintenue à l'état de lit soufflé par un débit de gaz fixé, une fois la taille de la poudre connue et les conditions énergétiques d'opération de la torche fixées.

Dans les expériences effectuées, le diamètre de la colonne D_c ainsi que le diamètre de l'injecteur D_i sont constants, le dernier terme de cette corrélation est donc constant et n'intervient pas dans la corrélation. Le modèle comprend cinq constantes à déterminer.

La méthode de régression par les moindres carrés a été utilisée pour la détermination des constantes. Les résultats sont consignés dans le tableau 2.12.

TABEAU 2.12 PARAMÈTRES DE CORRÉLATION ET COEFFICIENTS DE RÉGRESSION

Corrélation	Paramètres de corrélation					Coefficient de régression R ²
	a ou a'	b ou b'	c ou c'	d ou d'	e ou e'	
(2.15)	0.13	1.44	-0.4	3	-0.03	0.99
(2.16)	0.52	-0.15	-0.01	2	0.005	0.97

L'équation (2.17) permet de corréler tous les résultats des mesures (121 points) avec un bon coefficient de régression $R^2 = 0.99$ et une marge d'erreur maximale de $\pm 15\%$.

$$Re_{pms} = \left(\frac{H}{d_p}\right)^{0.13} Ar^{1.44} \left(\frac{\rho_s - \rho_f}{\rho_f}\right)^{-0.4} \left(\frac{D_i}{d_p}\right)^3 (tg(a/2))^{-0.03} \quad (2.17)$$

La figure 2.35 montre une comparaison graphique entre le nombre de Reynolds calculé à partir de l'équation (2.17) et celui déduit des mesures. La figure 2.36 montre la distribution des écarts relatifs en fonction du No d'expérience. La correspondance entre No de l'expérience et conditions expérimentales est donnée dans les tableaux en Annexe A2.

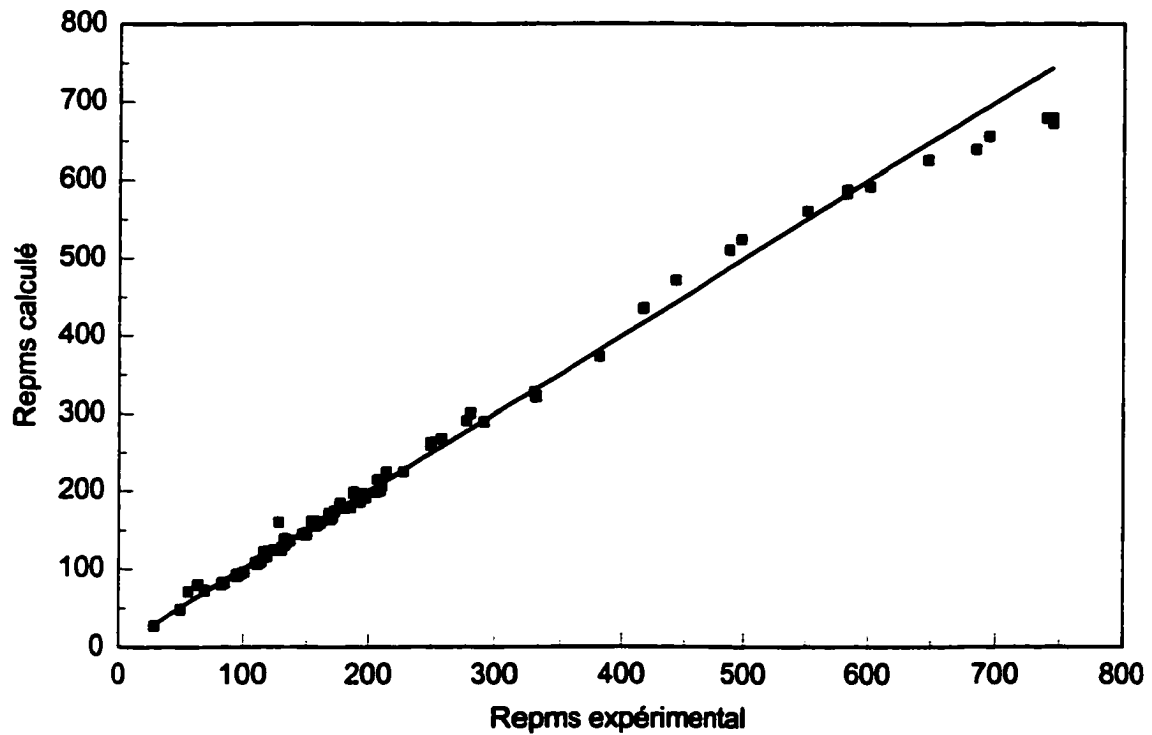


Figure 2.35 Comparaison entre les données expérimentales et celles calculées à partir de l'équation (2-17).

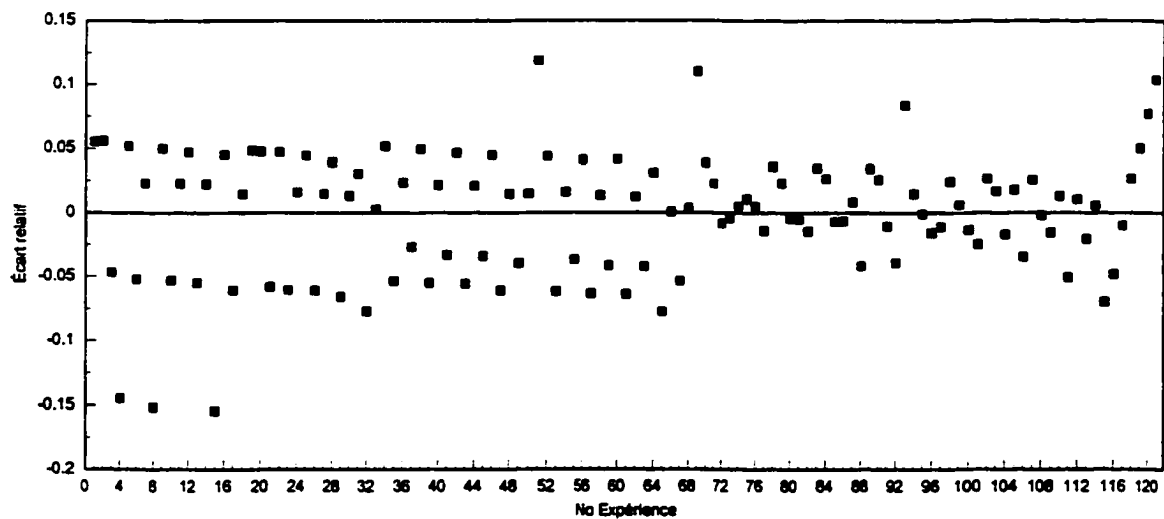


Figure 2.36 Distribution des écarts relatifs entre les valeurs de Re_{pms} mesurées et celles calculées à partir de l'équation 2.17 en fonction du N° des expériences.

Bien que l'écart maximal soit de $\pm 15\%$, la majorité des mesures (92 %) ont un écart qui ne dépasse pas $\pm 7.5\%$.

L'équation (2.18) permet de corréler tous les résultats de mesure (121 points) avec un bon coefficient de régression $R^2 = 0.97$ et une marge d'erreur maximale de $\pm 34\%$.

$$\frac{H}{d_p} = (\text{Re}_{pms})^{0.52} Ar^{-0.15} \left(\frac{\rho_s - \rho_f}{\rho_f}\right)^{-0.01} \left(\frac{D_i}{d_p}\right)^2 (\text{tg}(a/2))^{0.005} \quad (2.18)$$

La figure 2.37 montre une comparaison graphique entre le groupe $\frac{H}{d_p}$ calculé à partir de l'équation (2.18) et celui déduit des mesures. La figure 2.38 montre la distribution des écarts relatifs en fonction du No d'expérience. La correspondance entre No de l'expérience et conditions expérimentales est donnée dans les tableaux en Annexe A2.

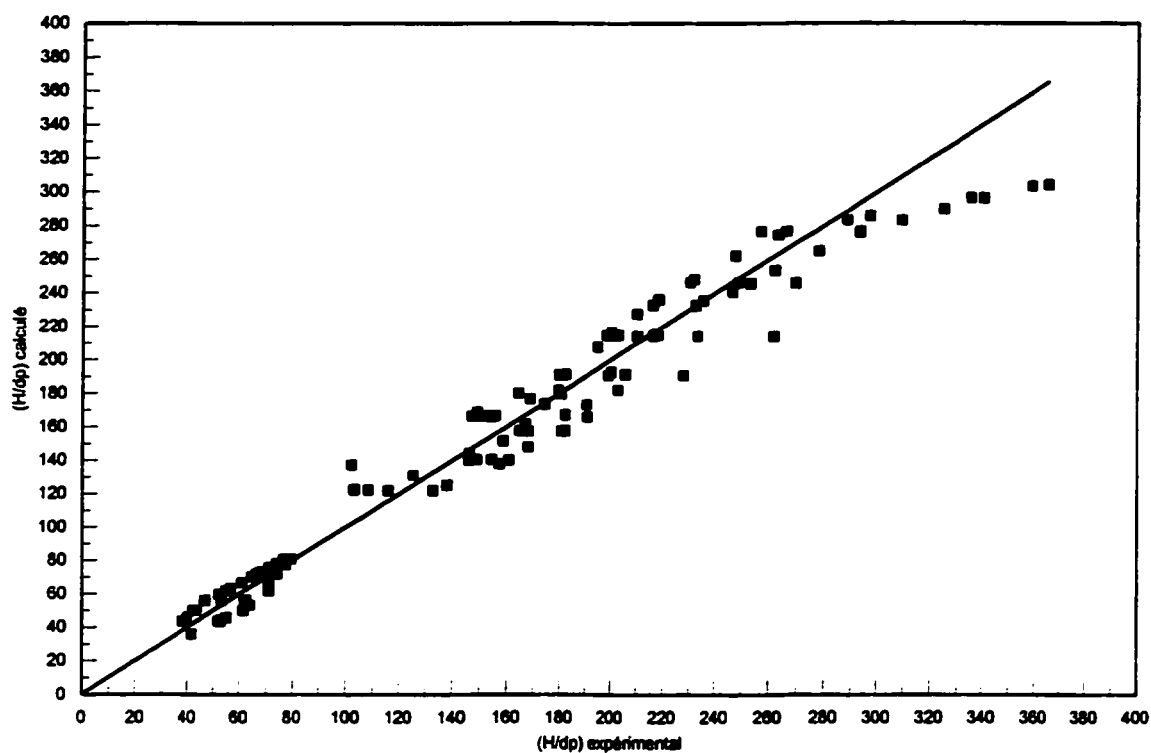


Figure 2.37 Comparaison entre les données expérimentales et celles calculées à partir de l'équation (2-18).

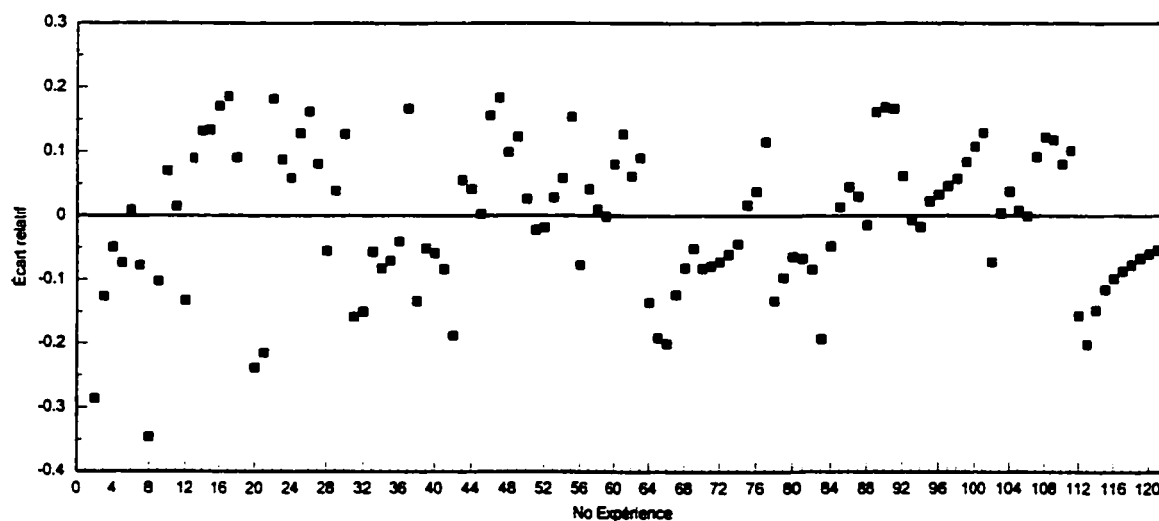


Figure 2.38 Distribution des écarts relatifs entre les valeurs de $\frac{H}{d_p}$ mesurées et celles calculées à partir de l'équation 2.18 en fonction du N° des expériences.

Bien que l'écart maximal soit de $\pm 34\%$, la majorité des mesures (96 %) ont un écart qui ne dépasse pas $\pm 20\%$.

Les domaines de validité des corrélations établies 2.17 et 2.18 pour chaque groupement adimensionnel, sont résumés dans le tableau 2.13. Les domaines pour chaque paramètre ont été définis au tableau 2.8.

TABLEAU 2.13 **DOMAINE DE VALIDITÉ DES CORRÉLATIONS ÉTABLIES POUR CHAQUE GROUPE ADIMENSIONNEL**

Groupe adimensionnel	Domaine de variation au cours des expériences
$\pi_1 = Re_{pms} = \frac{\rho_f d_p U_{ms}^i}{\mu}$	25 - 800
$\pi_2 = Ar = \frac{g d_p^3 \rho_f (\rho_s - \rho_f)}{\mu^2}$	0.35 - 200
$\pi_3 = \frac{Di}{d_p}$	2.5 - 15
$\pi_4 = \frac{H}{d_p}$	35 - 400
$\pi_5 = \frac{Di}{D_c}$	0.028
$\pi_6 = \frac{\rho_s - \rho_f}{\rho_f}$	68000 - 113000
$\pi_7 = tg(a/2)$	0.176 - 0.58

2.4.13 Courbes de transition: lit fixe - lit soufflé

Les courbes de transition lit fixe - lit soufflé sont représentées en figures 2.39 et 2.40 pour les deux angles de cône 40° et 60° et pour les poudres Al₂O₃, Grit 30, Grit 24, Grit 20 et Grit 12. Pour chaque catégorie de taille de poudre, la ligne (en continu dans les figures) obtenue à partir de la corrélation (2.18) représente la limite entre le régime de lit fixe à gauche et le régime de lit soufflé à droite. Les points de mesure (symboles) sont aussi représentés sur les mêmes figures.

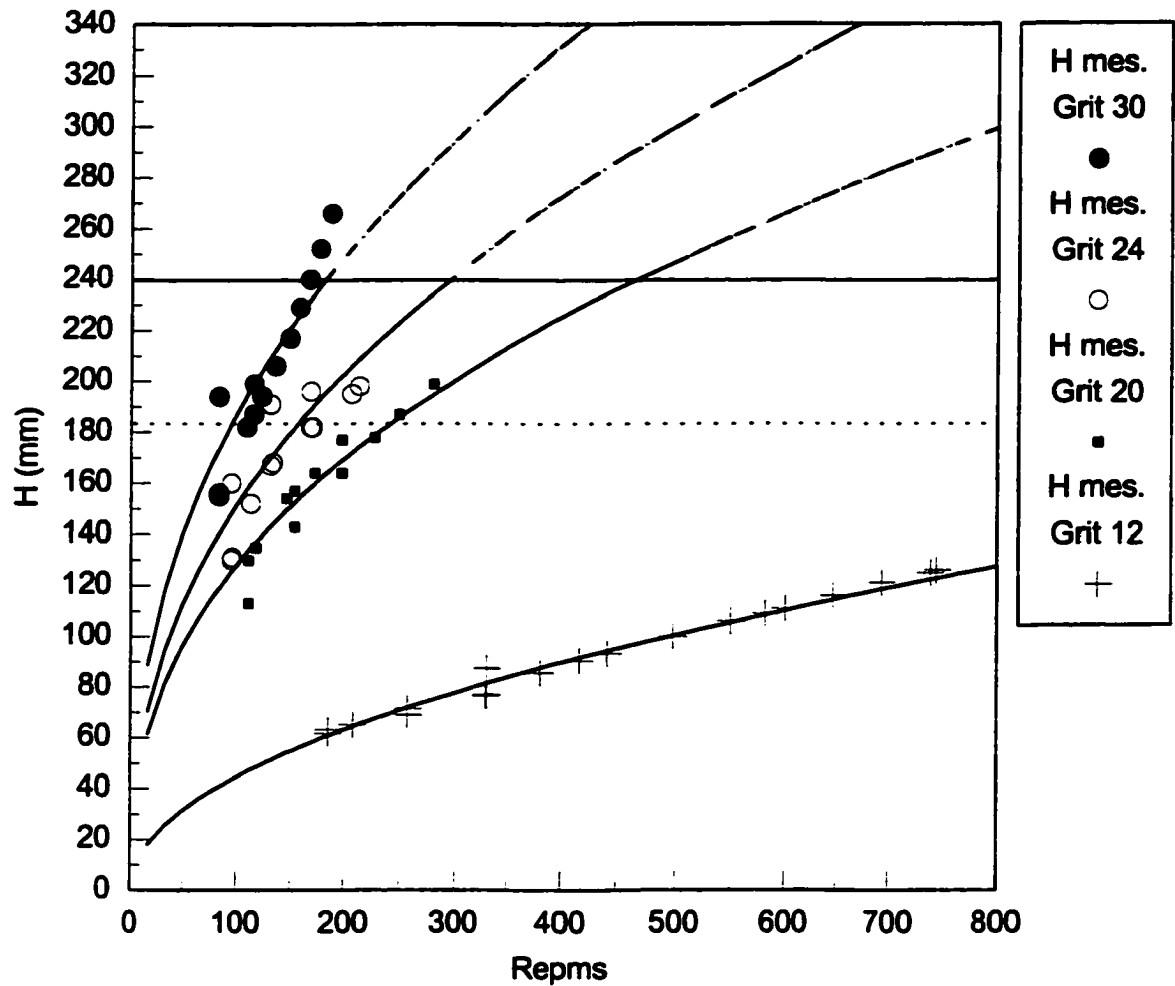


Figure 2.39 Courbes de transition lit fixe - lit soufflé pour les différentes catégories de poudre et pour l'angle de cône 40° . Les traits pleins représentent les valeurs calculées et les symboles les valeurs mesurées. Le trait en pointillé délimite la hauteur du cône (182.7 mm).

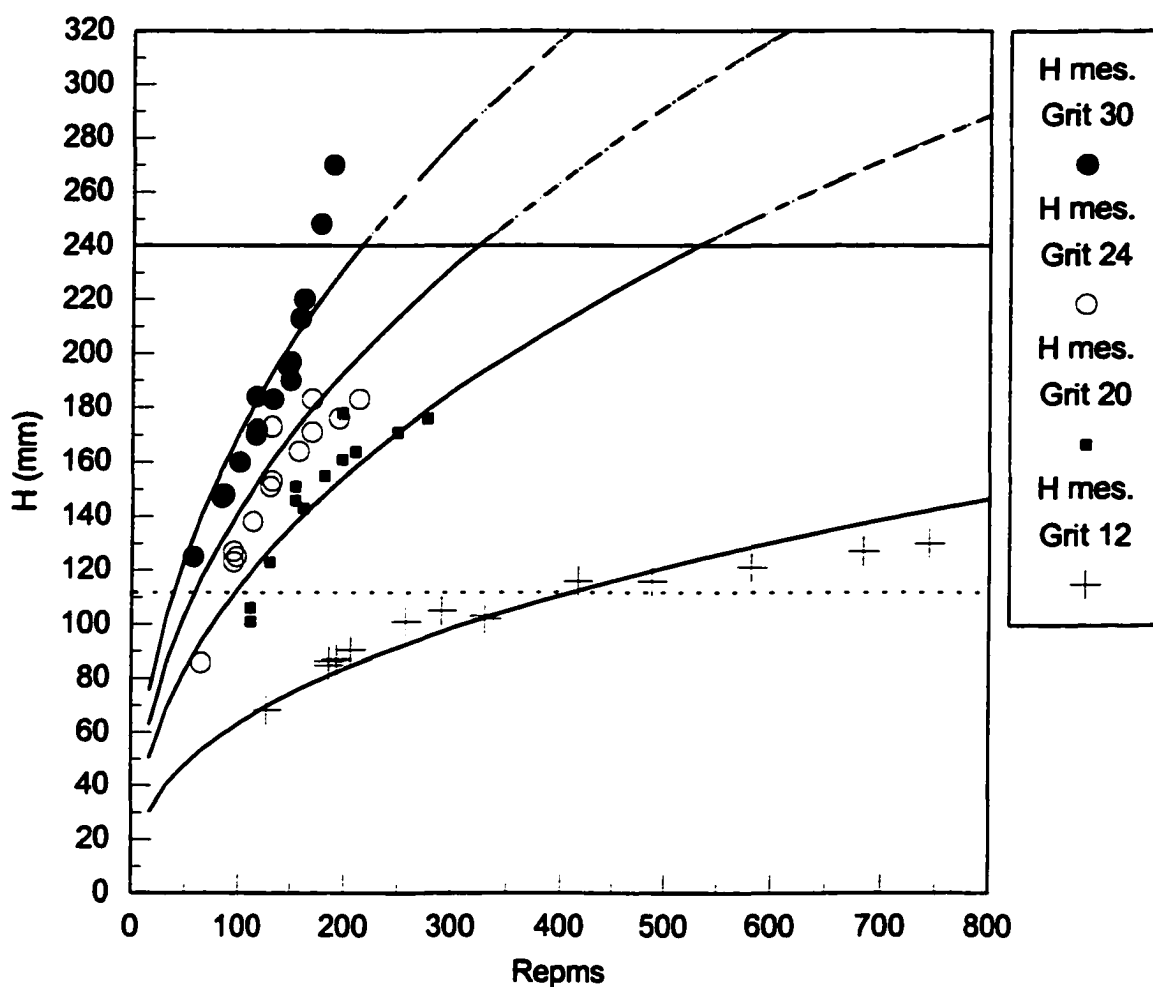


Figure 2.40 Courbes de transition lit fixe - lit soufflé pour les différentes catégories de poudre et pour l'angle de cône 60° . Les traits pleins représentent les valeurs calculées et les symboles les valeurs mesurées. Le trait en pointillé délimite la hauteur du cône (115.2 mm).

Contrairement à la représentation hauteur de lit en fonction du débit volumique du gaz en SLPM, illustrée dans les figures 2.27 à 2.34, la nouvelle représentation illustrée en figures 2.39 et 2.40 tient compte de l'effet de la puissance. Re_{pms} est calculé pour les conditions d'entrée (sortie de l'anode). Les propriétés du gaz et la vitesse minimale de soufflage sont calculées à la température enthalpique moyenne du plasma à la sortie de l'anode.

L'utilité des diagrammes illustrés en figures 2.39 et 2.40 consiste à pouvoir déterminer la charge de solide maximale à mettre dans le réacteur pour un Re_p donné calculé à la température

enthalpique moyenne du plasma à la sortie de l'anode une fois le débit de gaz, la taille des particules et les conditions énergétiques d'opération de la torche fixés.

Les corrélations établies précédemment permettent comme le montrent les figures 2.39 et 2.40 de prédire correctement le point de transition lit fixe - lit soufflé. Des écarts notables entre la corrélation et les mesures apparaissent cependant à des hauteurs de lits élevées obtenues avec la taille de poudre Grit 30 (740 μm). D'après les figures 2.39 et 2.40, il existe une hauteur de charge critique au delà de laquelle la tendance d'évolution de la hauteur de charge maximale n'est plus prédite par la corrélation établie. Cette hauteur critique est de l'ordre de 240 mm. Le nombre limité de résultats obtenus à partir de cette hauteur est limité et ne permet pas d'approfondir la discussion de cette question. Les résultats des études de Bamrim [BAMRIM et coll., 1992] qui s'est intéressé à établir une corrélation pour la transition lit fixe - lit soufflé ont été obtenus pour des hauteurs de lit inférieures à 120 mm avec une colonne cylindrique de 90 mm ($H/D_c \ll 2$) et n'a donc pas observé de changement de tendance à partir d'une hauteur de lit critique. Dans le cas de la présente étude, la hauteur de lit 240 mm est telle que le rapport H/D_c est ≈ 2 . Dans l'analyse faite par Epstein [EPSTEIN et coll., 1974], pour les lits soufflés conique-cylindrique, on distingue souvent entre le lit soufflé à charge élevée $H/D_c > 2$ et le lit soufflé à charge faible $H/D_c < 2$. Les lits soufflés à charge faible sont marqués par l'influence de la zone conique alors que pour les lits soufflés à charge élevée, l'influence de la zone conique sur l'hydrodynamique est moins ressentie. La majorité des résultats obtenus au cours de la présente étude sont tels que $H/D_c < 2$. On est alors dans le cas où l'influence de la zone conique sur l'hydrodynamique est importante. Les corrélations obtenues sont donc plus adaptées aux lits soufflés à faible charge et commencent à diverger lorsque $H/D_c > 2$. Dans les conditions pratiques du réacteur à lit soufflé par plasma, le cas fréquent sera tel que $H/D_c < 2$.

2.4.14 Analyse des effets des différents paramètres

Effet de la taille des particules

L'effet de la taille des particules sur la hauteur maximale de lit (charge de solide maximale) qu'on peut maintenir à l'état de lit soufflé pour un débit de gaz fixé est illustré dans les figures 2.41 et 2.42 pour les deux angles de cône 40° et 60°. À cause du couplage entre le débit

du gaz et la chute de tension dans l'arc , le fait de fixer le débit du gaz pour un courant donné revient aussi à fixer la puissance dissipée dans l'arc, la température enthalpique du plasma et la vitesse moyenne du jet à la sortie de l'anode. Pour chaque débit du gaz, la puissance, la température et la vitesse du gaz à la sortie de l'anode sont rapportées dans le tableau 2.9 pour le courant utilisé, $I = 274 \pm 5$ A.

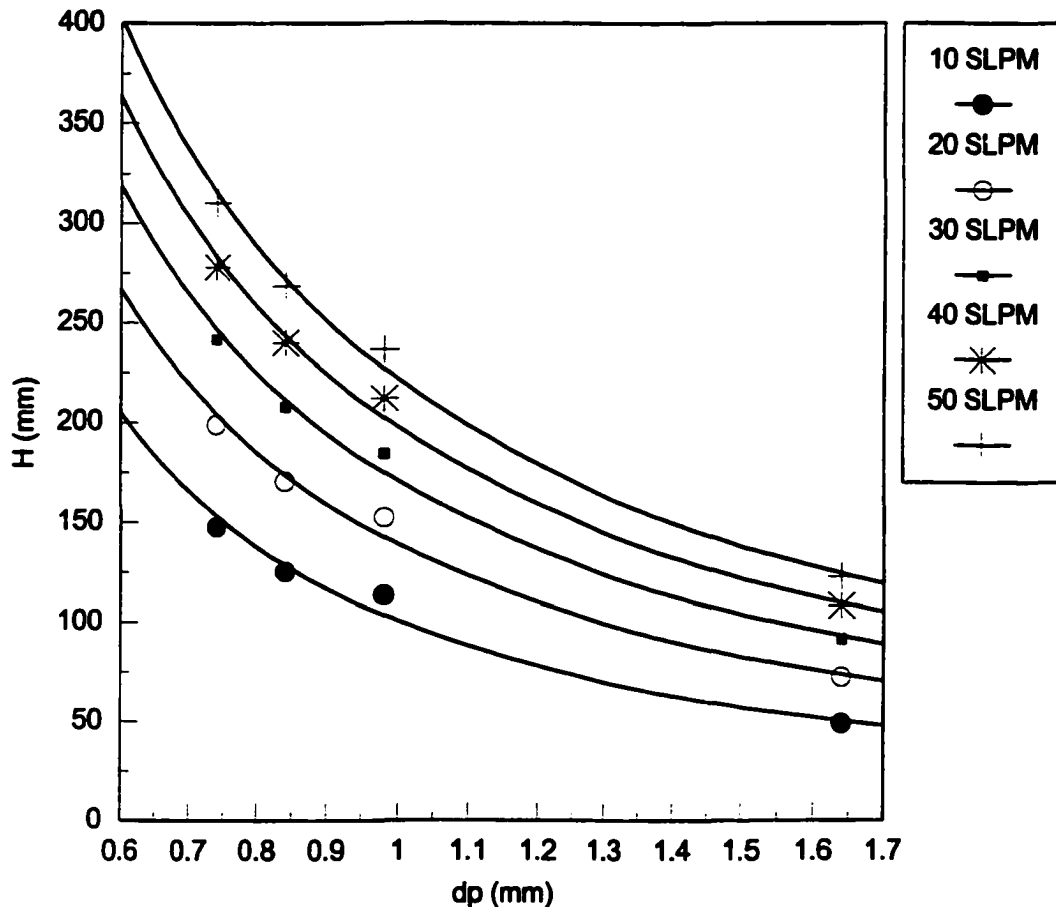


Figure 2.41 Évolution de la hauteur maximale de lit maintenue à l'état soufflé pour un débit de gaz et un courant fixé ($I = 274 \pm 5$ A). Cas de l'angle de cône 40° .

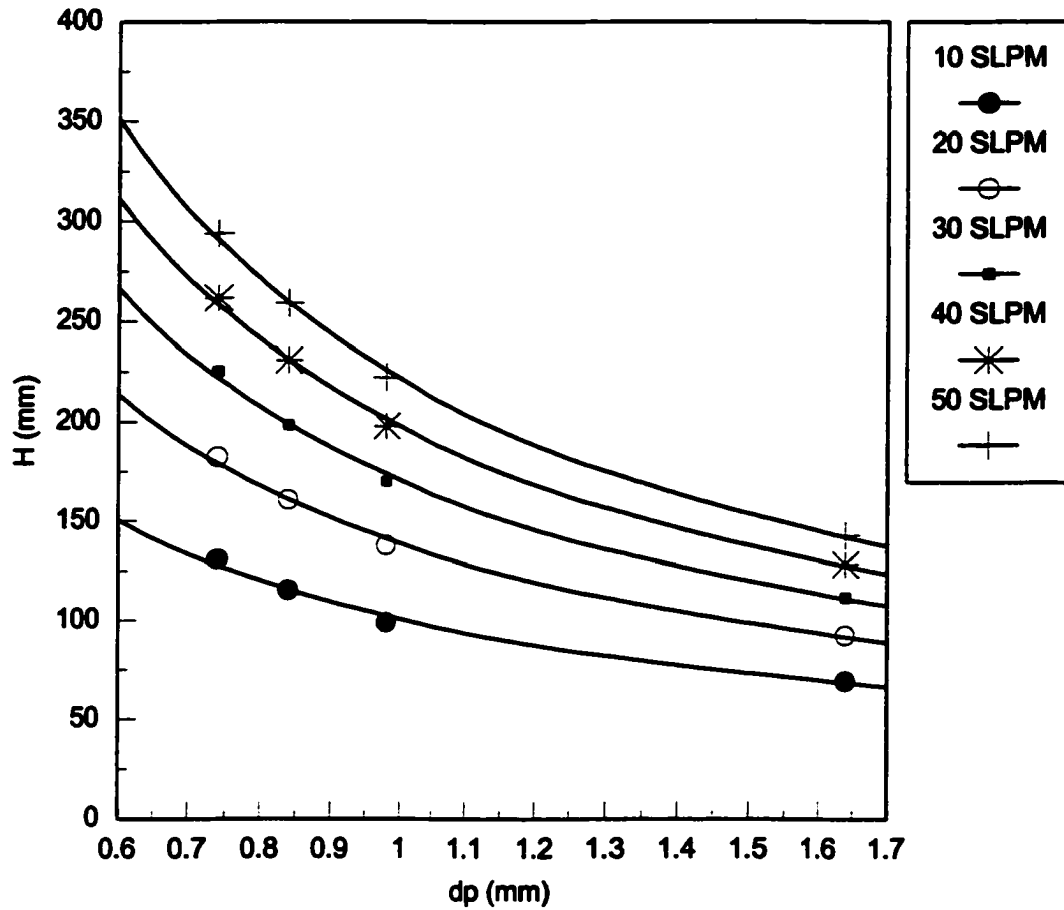


Figure 2.42 Évolution de la hauteur maximale de lit maintenue à l'état soufflé pour un débit de gaz et un courant fixé ($I = 274 \pm 5$ A). Cas de l'angle de cône 60° .

Les courbes sont calculées à partir de la corrélation 2.18. Pour un débit de gaz fixé, la hauteur H diminue lorsque la taille de la poudre augmente. L'évolution de H en fonction de d_p suit une loi de puissance sous forme $H = kd_p^n$ où k et n sont des constantes pour chacune des courbes dans les figures 2.41 et 2.42. La valeur de la puissance n pour chaque cas est rapportée dans le tableau 2.14.

TABEAU 2.14 **VALEUR DE LA CONSTANCE n DANS LA LOI DE PUISSANCE**
 $H = kd_p^n$ POUR LES COURBES DANS LES FIGURES 2.40 ET 2.41.

Angle du cône	Débit du gaz (SLPM)	Valeur de la constante n
40°	10	-0.98
	20	-1.28
	30	-1.23
	40	-1.19
	50	-1.17
60°	10	-0.79
	20	-0.84
	30	-0.87
	40	-0.89
	50	-0.90

Flamant [FLAMANT, 1990a] a déduit à partir de mesures de la hauteur de charge maximale faites sous des conditions: débit de gaz (argon) 30 SLPM, courant $I = 274$ A et voltage $V = 24$ V, que la hauteur de charge maximale est telle que $H \propto d_p^{-0.77}$ soit une valeur de la constante $n = -0.77$. Les valeurs trouvées au cours de la présente étude sont proches de cette valeur pour l'angle de cône de 60° (angle de cône dans le cas de Flamant). La présente étude montre en fait que la constante n varie légèrement avec le débit de gaz et dépend de l'angle du cône (voire tableau 2.14).

Effet de l'angle du cône

La base conique du réacteur facilite l'écoulement du solide de la zone annulaire vers la centre (zone du jet). Dans une configuration de réacteur où la base est plate, des zones stagnantes de lit de particules existent à la base du réacteur. Une configuration de réacteur à base conique est le plus souvent adoptée par les auteurs ayant travaillé avec un lit soufflé [EPSTEIN et coll., 1974]. L'angle de cône influe sur l'étendue de la zone stagnante dans le lit. Plusieurs auteurs rapportés par [EPSTEIN et coll., 1974] et plus récemment par [HE et coll., 1997] qui ont utilisé des demi- colonnes à base conique avec une face transparente en verre ou en Plexiglas ont pu observer une croissance de la zone stagnante avec l'angle du cône. Dans la présente étude, vue la complexité technique engendrée par les hautes températures, un tel

montage n'a pu être utilisé. Seules quelques observations visuelles sur la qualité de régime de lit soufflé et densité de la fontaine ont permis de juger la qualité de circulation dans la lit.

À partir des observations faites au début de ce travail, il s'est avéré que même avec une base conique des zones stagnantes peuvent se développer s'il existe une zone plate entre l'entrée du cône et la sortie de l'anode. Après l'élimination de cette partie plate qui existait dans le premier montage, l'angle du cône a été inclus comme paramètre dans l'étude de l'hydrodynamique du lit soufflé par plasma. Quelques tests faits avec l'angle de cône de 20° ont permis à partir des observations faites sur l'aspect de la fontaine et la qualité de circulation dans le lit de conclure qu'une base conique avec un angle de cône très petit permet d'améliorer la qualité de régime de lit soufflé et contribue à l'élimination des zones stagnantes dans le lit. Cependant l'angle de cône de 20° n'a pas été inclus dans la gamme des angles de cône testés à cause des difficultés techniques dans son adaptation au montage utilisé pour l'étude de l'hydrodynamique. Seuls les deux angles de cône 40° et 60° ont été étudiés. L'influence de l'angle du cône sur la hauteur de charge maximale maintenue à l'état soufflé sous un débit fixé est illustrée en figure 2.43 où l'évolution de la hauteur de charge maximale H en fonction de d_p est comparée pour les deux angles de cône 40° et 60° pour le débit de gaz 20 SLPM. Les courbes sont similaires pour les autres débits.

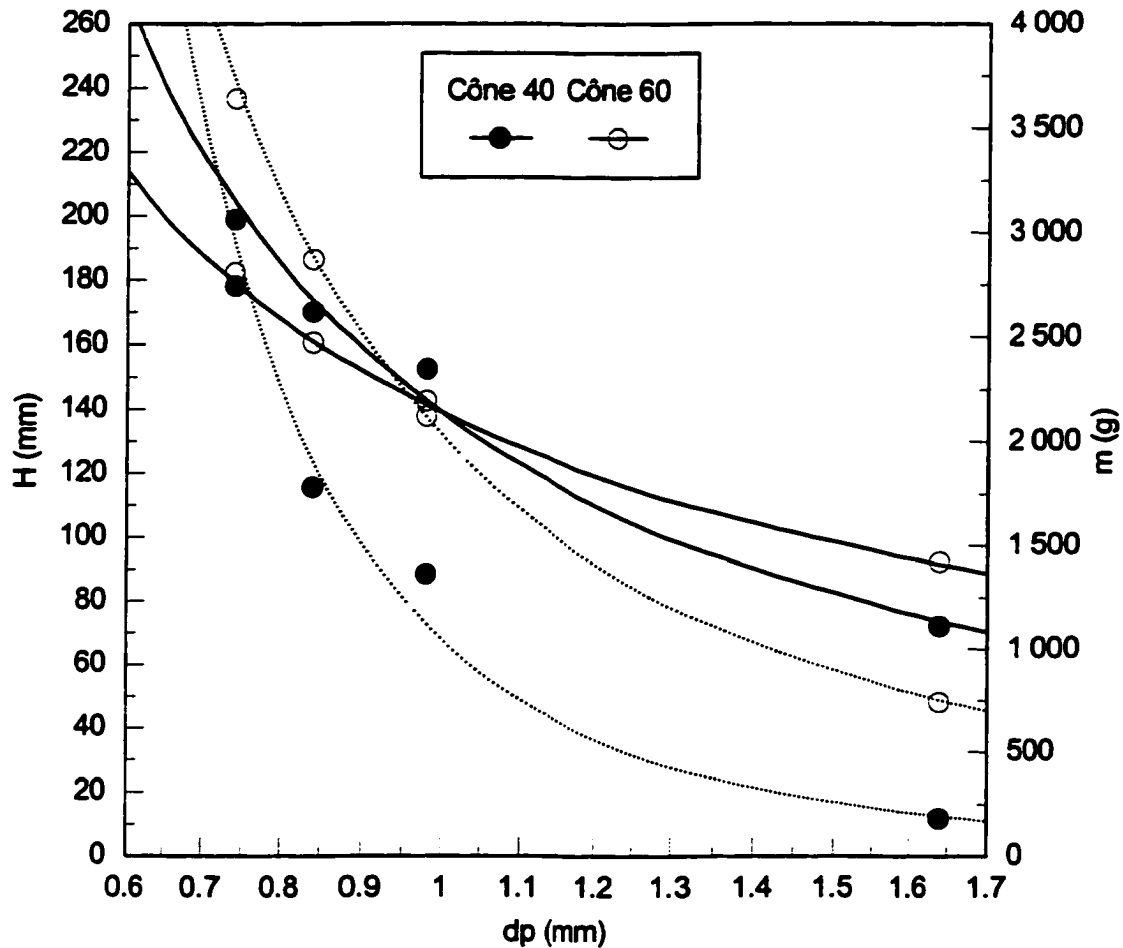


Figure 2.43 Évolution de la hauteur de charge maximale H , ainsi que de la masse correspondante m , en fonction de la taille de particules d_p pour les deux angles de cône 40° et 60° pour le débit de gaz 20 SLPM. : $m = f(d_p)$, ____ : $H = f(d_p)$.

L'évolution de la hauteur de charge maximale ne permet pas de conclure sur l'influence de l'angle de cône sur la charge maximale. Lorsque la charge maximale est exprimée en masse de solide (courbes en pointillé), on peut voir que la charge maximale pour l'angle de cône le plus grand (60°) reste supérieure à celle obtenue pour l'angle de cône le plus faible (40°) pour chaque taille de particules. L'évolution illustrée en figure 2.43 est la même pour tous les débits de gaz utilisés. Plus l'angle de cône est grand, plus la charge maximale en masse de solide maintenue à l'état soufflé par un débit de gaz fixé est grande. On serait donc tenté d'utiliser des angles de cône grands. Cependant, l'angle de cône a un effet adverse sur l'étendue de la zone stagnante dans le

lit. Pour minimiser l'étendue de cette zone stagnante, il faut choisir l'angle de cône le plus petit possible. Dans ce cas, on est limité par des considérations techniques et par le cas limite où tout le lit a tendance à être soulevé par le jet et le régime de lit soufflé n'est plus possible [EPSTEIN et coll., 1974]. Pour l'angle de cône le plus faible qui a été testé au cours de cette étude (20°), ceci n'a pas été observé. Le choix de l'angle de cône optimal reste un compromis entre ces différentes considérations, en général comme préconisé par Epstein [EPSTEIN et coll., 1974], l'angle de cône à utiliser est de l'ordre de l'angle de friction interne du solide granuleux ($\approx 40^\circ$). Une valeur d'angle à la base de 40° a été choisie pour la confection de la base du réacteur dans le montage final exploité comme réacteur chimique pour la gazéification du coke de pétrole (chapitre 5). En comparaison Flamant [FLAMANT, 1990a] et Bamrim [BAMRIM et coll., 1992] ont utilisé un montage à angle de cône 60° , avec un diamètre de colonne de 90 mm.

Effet de la hauteur de charge maximale sur la vitesse minimale de soufflage

Les courbes de l'évolution de la vitesse minimale de soufflage en fonction de la hauteur de charge maximale pour chaque catégorie de poudre sont présentées dans les figures 2.44 et 2.45 pour les deux angles de cône 40° et 60° . La vitesse minimale de soufflage représentée dans ces courbes, U_{ms}^o est référée à l'entrée du cône (diamètre $D_o = 10$ mm). Elle est reliée à la vitesse minimale de soufflage référée à la sortie de l'anode U_{ms}^i par :

$$U_{ms}^o = U_{ms}^i \left(\frac{D_i}{D_o} \right)^2 = 0.16 U_{ms}^i.$$

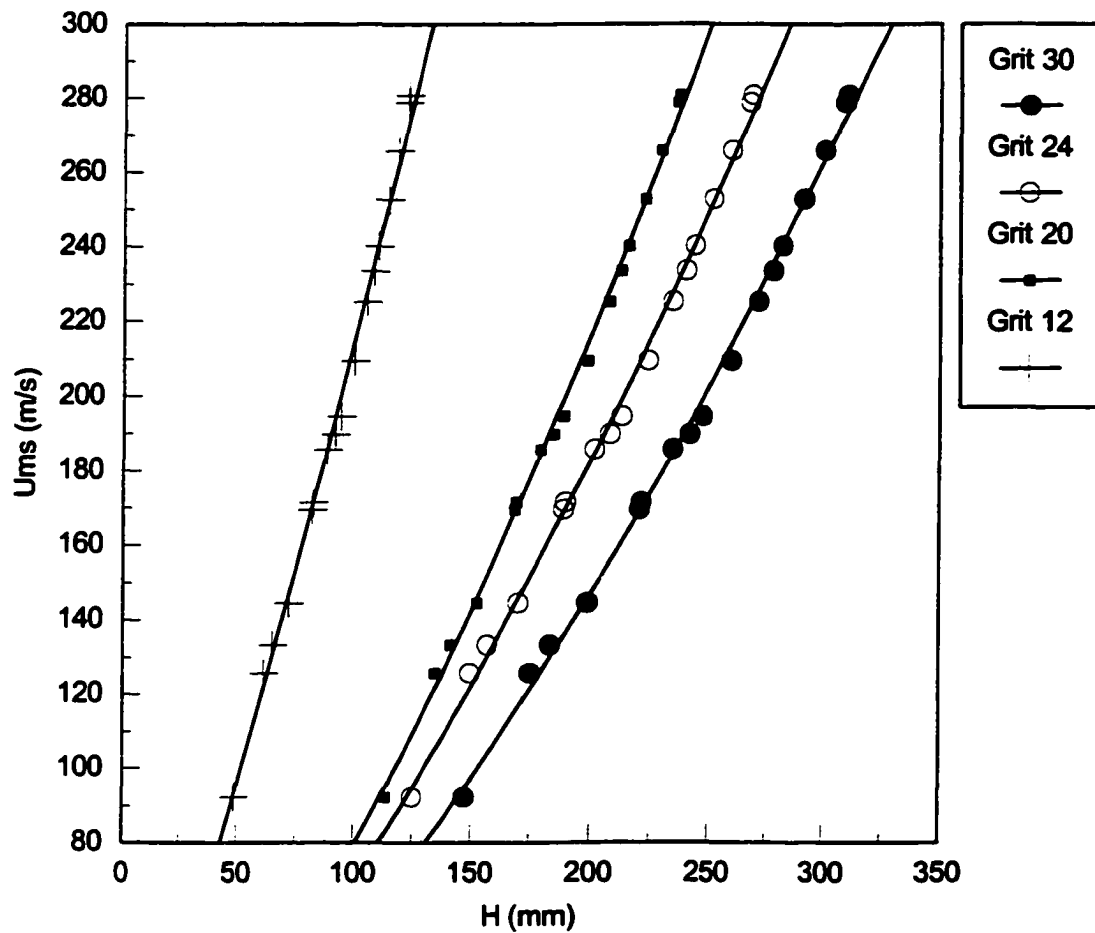


Figure 2.44 Évolution de la vitesse minimale de soufflage U_{ms}^o en fonction de la hauteur du lit pour les différentes catégories de poudre. Cas du cône d'angle 40° .

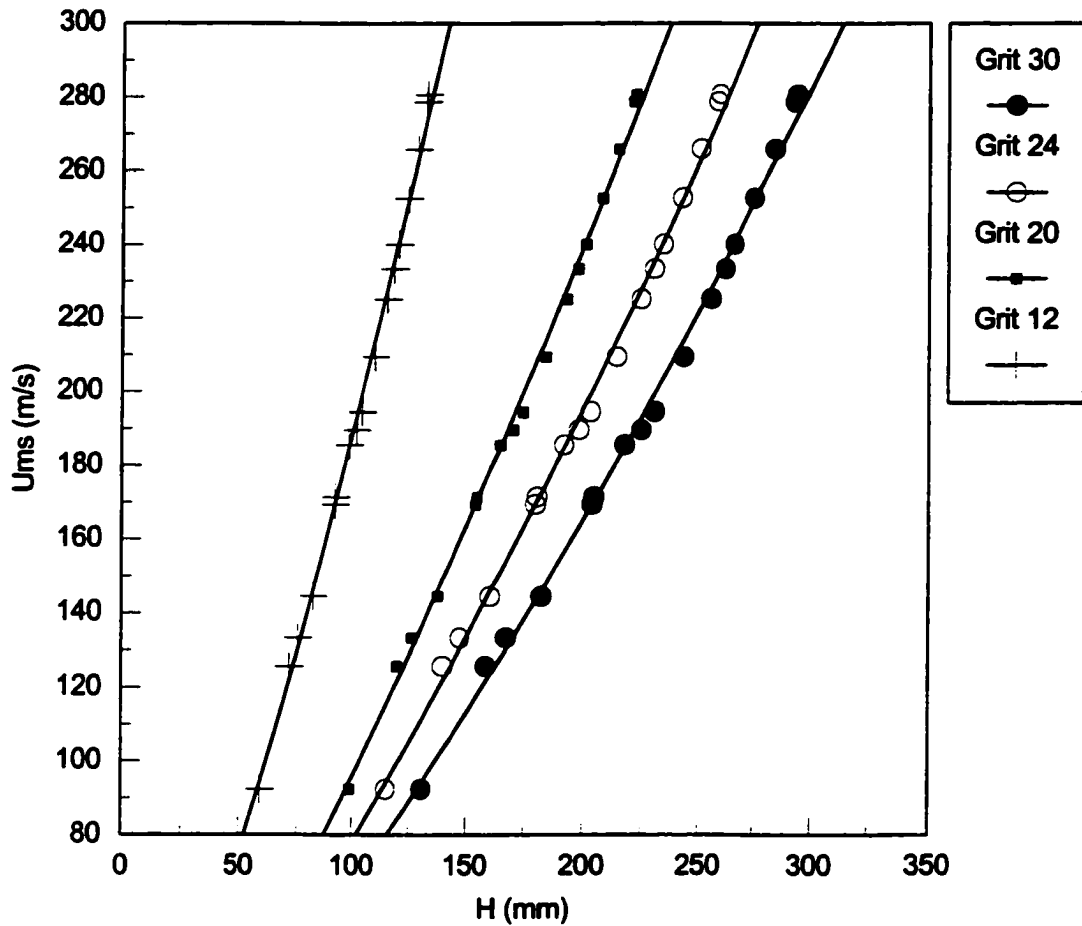


Figure 2.45 Évolution de la vitesse minimale de soufflage U_{ms}^0 en fonction de la hauteur du lit pour les différentes catégories de poudre. Cas du cône d'angle 60° .

Les courbes sont calculées à partir de la corrélation 2.18. Pour chaque catégorie de taille de poudre, La vitesse minimale de soufflage augmente en fonction de la hauteur de charge H selon une loi de puissance $U_{ms}^0 = k' H^{n'}$ où k' et n' sont des constantes pour chacune des courbes dans les figures 2.43 et 2.44. La valeur de la puissance n' pour chaque cas est rapportée dans le tableau 2.15.

TABLEAU 2.15 VALEUR DE LA CONSTANTE n' DANS LA LOI DE PUISSANCE
 $U_{ms}^o = k' H^{n'}$ POUR LES COURBES DANS LES FIGURES 2.43 ET 2.44.

Angle du cône	Catégorie de poudre	Valeur de la constante n'
40°	Grit 30 ($d_p = 0.74$ mm)	1.44
	Grit 24 ($d_p = 0.84$ mm)	1.40
	Grit 20 ($d_p = 0.98$ mm)	1.46
	Grit 12 ($d_p = 1.64$ mm)	1.18
60°	Grit 30 ($d_p = 0.74$ mm)	1.33
	Grit 24 ($d_p = 0.84$ mm)	1.32
	Grit 20 ($d_p = 0.98$ mm)	1.32
	Grit 12 ($d_p = 1.64$ mm)	1.32

La constante n' varie légèrement en fonction de l'angle du cône et de la taille de la poudre. La valeur moyenne $n' = 1.35$ est en concordance avec les résultats de certains auteurs ayant travaillé dans des lits soufflés coniques standard tels que Olzar [OLZAR et coll., 1992] (équation 2.19, $n' = 1.68$) et Tsvik [TSVIK et coll., 1967] (équation 2.20, $n' = 1.24$).

$$Re_{pms} = 0.126 Ar^{0.5} \left(\frac{D_b}{D_o} \right)^{1.68} \left[\tan\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right]^{-0.57} \quad (2.19)$$

$$Re_{pms} = 0.4 Ar^{0.52} \left(\frac{H}{D_i} \right)^{1.24} \left[\tan\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right]^{0.22} \quad (2.20)$$

Par contre, la valeur $n' = 1.35$ est en désaccord avec les résultats préliminaires de Flamant [FLAMANT, 1990a] qui a trouvé une valeur $n' = 0.45$ en accord avec la corrélation de Mathur et Gishler (équation (1.1)) établie pour les lits soufflés standard cylindriques qui prévoit une constante $n' = 0.5$.

Effet de la température

Pour étudier l'effet de la température sur les différentes variables: hauteur de charge maximale et vitesse minimale de soufflage, comme souligné par Flamant [FLAMANT, 1990a] c'est la température moyenne du lit T_b ou mieux la température du film $T_F = \frac{T_f + T_b}{2}$ qui doit être considérée. Cette température dépend entre autres des pertes thermiques du réacteur. Bien qu'un moyen de calculer la température T_b ait été établi au chapitre 3, il n'a pas été possible d'isoler l'effet de la température. En effet au cours des expériences faites pour l'étude de

l'hydrodynamique, le courant a été fixé à 274 ± 5 A, le débit du gaz a été varié entre 10 et 50 SLPM, la variation de la température du jet est due à la variation de la puissance dissipée dans l'arc à cause de la variation de la chute de tension. La puissance, la température enthalpique et la vitesse du jet correspondant à chaque débit de gaz ont été donnés au tableau 2.9. Il y a un couplage entre la variation de vitesse du jet et la température enthalpique via la relation $U_i = \frac{\dot{m}_g}{\rho_f(T_f)S_i}$. Pour étudier l'effet de la température, il faudrait pouvoir faire varier U_i et T_f indépendamment. Pour cela, on pourrait jouer sur le débit du gaz et le courant.

Il faut noter cependant l'effet directe de la température du gaz à l'entrée du lit sur la vitesse minimale du soufflage. Les auteurs qui ont fait une analyse théorique sur la vitesse minimale de soufflage notamment [EPSTEIN et coll., 1974] et [GHOSH, 1965] s'accordent sur le fait que la vitesse minimale de soufflage U_{ms} est proportionnelle au flux de quantité de mouvement du gaz à l'entrée du lit, M . Or on a :

$$M = \rho_f S_i U_i^2 = \frac{\dot{m}_g^2}{\rho_f S_i} \quad (2.21)$$

La densité du gaz ρ_f décroît lorsque la température augmente. Ainsi pour un débit massique de gaz fixé, il est possible d'augmenter M en augmentant la température du gaz. Il est donc possible de maintenir une hauteur de lit H (une charge de solide donnée) à l'état de lit soufflé avec moins de gaz dans un réacteur à lit soufflé par plasma en comparaison avec un lit soufflé standard. Le débit massique de gaz nécessaire pour maintenir une hauteur de lit H , soit pour atteindre la vitesse minimale de soufflage dans le lit soufflé par plasma $\dot{m}_g(T_f)$ (T_f température du plasma) est reliée au débit massique de gaz $\dot{m}_g(T_a)$ (T_a , température ambiante) nécessaire pour atteindre le même objectif dans le cas du lit soufflé standard par :

$$\frac{\dot{m}_g(T_a)}{\dot{m}_g(T_f)} = \left[\frac{\rho_f(T_a)}{\rho_f(T_f)} \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.22)$$

La relation (2.22) est obtenu à partir de l'équation (2.21) et en considérant que $U_{ms} \propto M$.

Le terme de droite dans l'équation (2.22) est de l'ordre de 5 à 6 dans nos conditions expérimentales. Il aurait donc fallu 5 à 6 fois plus de gaz pour maintenir les charges de solide utilisées à l'état de lit soufflé si on devait travailler à la température ambiante. Les avantages et les inconvénients de ce fait restent à discuter.

2.5 Conclusions

Les conclusions qui se dégagent de l'étude de l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma sont résumées ci dessous :

- La forme de la base du réacteur joue un rôle important dans son comportement hydrodynamique. Elle conditionne la stabilité, la circulation et l'existence de zones stagnantes dans le lit.
- L'angle de cône à la base joue un rôle important dans l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma. Plus l'angle de cône est petit, meilleur est la circulation dans le lit et la qualité du régime.
- Il existe une taille de solide critique en bas de laquelle, des instabilités se développent dans le lit en régime de lit soufflé cohérent. Dans le cas de l'alumine utilisée au cours de cette étude cette taille critique est de l'ordre de 0.450 mm.
- Deux corrélations ont été établies au cours de l'étude paramétrique. Elles permettent la détermination de la zone de transition lit fixe - lit soufflé. La première corrélation est utile pour déterminer la vitesse minimale de soufflage (débit minimal de gaz à utiliser) pour une hauteur statique du lit donnée (une charge solide donnée), une fois la taille de la poudre connue et les conditions énergétiques d'opération de la torche fixées. La deuxième corrélation est utile pour déterminer la hauteur de lit maximale (charge de solide maximale) qui serait maintenue à l'état de lit soufflé par un débit de gaz fixé, une fois la taille de la poudre connue et les conditions énergétiques d'opération de la torche fixées.
- Les corrélations établies montrent en outre que les conditions du jet à l'entrée du lit: vitesse et température enthalpique du jet à la sortie de l'anode, contrôlent l'hydrodynamique du réacteur. Ces deux paramètres sont contrôlables par le débit de gaz et le courant d'alimentation de la torche pour un gaz donné.

CHAPITRE 3

3. TRANSFERT DE CHALEUR DANS LE RÉACTEUR À LIT SOUFFLÉ PAR PLASMA DC.

3.1 Introduction

Contrairement au réacteur à lit soufflé standard à froid, l'utilisation du réacteur à lit soufflé par plasma est nécessairement liée à un transfert de chaleur: le jet de plasma est chaud ($T: 2500 - 25.10^3 \text{ K}$) et le solide est introduit dans le réacteur à la température ambiante.

L'interaction du jet de plasma avec le lit de particules solides se traduit par une trempe du jet de plasma ; une partie de l'énergie initiale du jet est transférée aux particules (énergie utile) et le reste constitue les pertes vers l'environnement. L'objectif des opérations dans les réacteurs plasma est le traitement physico-chimique du solide à haute température. Quel que soit la nature de l'opération, on vise à maximiser le transfert d'énergie plasma - particules et à minimiser les pertes vers l'environnement. Dans le bilan énergétique global du système, des pertes d'énergie importantes sont liées au système de génération. Dans les torches à plasma DC, elles sont causées par le refroidissement des éléments: cathode et anode nécessaire à leur protection.

Après une analyse des différents phénomènes liés au transfert plasma - particules ainsi qu'aux études consacrées aux transferts de chaleur dans les lits fluidisés ou soufflés, des bilans énergétiques ont été conduits sur l'élément de génération et sur le réacteur. Le bilan énergétique en temps réel sur la torche permet de voir la variation des caractéristiques du jet à la sortie de l'anode au cours du temps ainsi que ses implications sur la stabilité hydrodynamique du système. Le bilan global sur le réacteur permet d'estimer les différentes pertes thermiques. Ces bilans expérimentaux sont ensuite utilisés dans un modèle de transfert d'énergie global pour estimer la température moyenne du lit qu'on peut atteindre sous différentes conditions de fonctionnement: charge de solide, courant d'alimentation et débit de gaz ainsi que l'influence des pertes de chaleur sur cette température moyenne. Les profils de température relevés dans le lit au cours des différentes expériences sont ensuite analysés et les conclusions qui découlent de l'étude menée sont présentées.

3.2 Mécanismes de transfert de chaleur

Après la sortie de l'anode, une partie du gaz s'infiltré dans la zone annulaire alors que le reste constitue le jet central. Dans la zone annulaire les mécanismes de transfert sont similaires à ceux dans un lit fixe alors que dans la zone du jet, on a affaire à une phase diluée vers la base qui évolue vers une phase dense (fluidisée) à mesure que l'on se rapproche de la surface du lit. En effet le jet s'enrichit de particules issues de la zone annulaire à mesure qu'on se rapproche de la surface du lit.

Les mécanismes de transfert à l'échelle de la particule sont résumés ci-après. On considère que la particule entre dans le jet à la base, après un séjour dans la zone du jet, elle retombe dans la zone annulaire pour recommencer son cycle par l'entrée dans la zone du jet.

3.2.1 Transfert dans la zone du jet

La température de la particule dans le jet est déterminée par le bilan énergétique dans la couche limite autour de la particule:

$$Q_T = Q_{cp} + Q_v + Q_{cv} + Q_R \quad (3.1)$$

où Q_T est l'énergie totale fournie par le plasma à la particule

Q_{cp} l'énergie absorbée par le chauffage de la particule

Q_v l'énergie absorbée par la vaporisation

Q_{cv} l'énergie absorbée par le chauffage des vapeurs

et Q_R est l'énergie perdue par rayonnement

L'énergie totale fournie par le plasma à la particule s'exprime à l'aide du coefficient de transfert de chaleur h , de la surface de la particule S_p et de la différence des températures plasma - particule ($T_f - T_p$) par :

$$Q_T = hS_p(T_f - T_p) \quad (3.2)$$

Dans le coefficient de transfert h , seuls les transferts par conduction et par convection dans la couche limite sont pris en compte. En général, l'hypothèse d'un plasma optiquement mince est retenue et le rayonnement du plasma vers la particule peut être négligé sauf en cas de présence de vapeurs métalliques [MOSTAGHIMI et coll., 1984], [ESSOLTANI, 1991]. Plusieurs corrélations sont disponibles dans la littérature pour la détermination du coefficient h . Elles donnent le nombre de Nusselt en fonction du nombre de Reynolds et du nombre de Prandtl

[FISZDON, 1979], [SAYEGH et Coll., 1979a], [SAYEGH et Coll., 1979b], [VARDELLE et Coll., 1983], [LEE et Coll., 1985] et [YOUNG et Coll., 1987].

Bourdin [BOURDIN et Coll., 1983a] a montré que si le rayon de la particule est petit devant celui où l'on peut considérer le plasma non perturbé par la particule, le terme conductif du nombre du Nusselt est égal à 2 si la conductivité thermique utilisée est la moyenne intégrée dans la couche limite:

$$\bar{k}_f = \frac{1}{T_f - T_p} \int_{T_p}^{T_f} k_f(T) dT \quad (3.3)$$

D'autre part, au cours du chauffage d'une particule par plasma, le nombre de Nusselt décroît rapidement et atteint une valeur 2 au bout de 1 μ s pour une particule d'Alumine de 100 μ m de diamètre dans un plasma d'Azote à 10000 K. Le temps de séjour des particules dans la zone du jet étant de l'ordre de quelques millisecondes, plusieurs modèles supposent le transfert purement conductif ($Nu = 2$) [VARDELLE, 1987] et [HUMBERT et Coll., 1992].

Si on considère que la température de la particule augmente sans atteindre toutefois la température de fusion, l'équation de bilan (3.1), se réduit à :

$$m_p C_p \frac{dT_p}{dt} = h S p (T_f - T_p) - S p \sigma \epsilon (T_p^4 - T_a^4) \quad (3.4)$$

Bourdin [BOURDIN et Coll., 1983a], a comparé les pertes radiatives de la particule vers l'environnement pour une particule isolée dans des plasmas d'argon, d'azote et d'hydrogène vis à vis de l'énergie reçue du plasma. L'analyse montre que la perte radiative ne devient importante que pour $T_p > 2000$ K et $T_f < 4000$ K.

En tenant compte de toutes ces simplifications [BOURDIN, 1983b], il est possible d'estimer la température atteinte par la particule au bout d'un temps de chauffage t par :

$$\frac{(T_p - T_f)}{(T_{p0} - T_f)} = \exp\left(\frac{-12 \bar{k}_f}{\rho_p C_p d_p^2} t\right) \quad (3.5)$$

où \bar{k}_f est la conductivité moyenne intégrée dans la couche limite

T_{p0} est la température initiale de la particule

ρ_p , C_p et d_p sont respectivement la masse volumique, la chaleur massique et le diamètre de la particule.

L'équation (3.5) montre que la particule s'échauffe d'autant plus rapidement que $\overline{k_f}$ est grand et ρ_p , C_p et d_p sont faibles.

L'approche simplifiée précédente considère le cas où la particule n'atteint pas la température de fusion. Les équations du bilan détaillé pour toutes les gammes de température incluant la fusion et l'évaporation de la particule sont disponibles dans la littérature, notamment dans [BOURDIN et Coll., 1983b] et [PROULX et Coll., 1985]. Dans la réalité, le traitement de particules dans un jet de plasma dépend de leur trajectoire dans l'écoulement qui est conditionnée par la nature du gaz plasmagène, par les champs de vitesse et de température de l'écoulement ainsi que par leur taille, leur densité et leur vitesse d'injection. L'approche souvent utilisée lors de la modélisation est la résolution des équations de continuité, de quantité de mouvement et d'énergie pour le jet de plasma sans particules. La trajectoire de la particule est ensuite calculée à partir du bilan de forces qui s'exercent sur la particule. L'équation de bilan d'énergie sur la particule est ensuite résolue pour déterminer sa température. Cette approche qui ne tient pas compte de l'effet de la particule sur le jet de plasma n'est plus valide dans le cas d'un milieu dense (charge de poudre importante). En effet, les particules modifient l'écoulement et il y a couplage entre les distributions de vitesse et de température pour le plasma et les particules. Les charges de poudre élevées ont aussi pour effet un refroidissement important du jet de plasma. PROULX [PROULX, 1987] a développé un modèle qui permet de tenir compte de l'effet de charge de particules en introduisant dans l'équation d'énergie du plasma un terme puits qui représente la chaleur absorbée par les particules.

D'autres phénomènes ayant une influence sur le transfert de chaleur plasma particules sont analysés dans la littérature:

L'Effet de l'évaporation se traduit par une diminution du transfert de chaleur à la particule ainsi que par la modification des propriétés du gaz. Certains auteurs notamment Chen [CHEN et Coll, 1983a] ont proposé des corrections à cet effet.

L'effet Knudsen qui se manifeste pour des particules de faible taille ($d_p < 10 \mu\text{m}$), traduit l'effet de raréfaction et conduit à une diminution de la puissance transmise à la particule. Pour en tenir

compte Chen [CHEN et Coll., 1983b] proposent de multiplier le flux de chaleur transmis à la particule par un facteur correctif.

Effet de la conduction interne dans la particule (propagation). L'importance revêtue par le phénomène de conduction dans la particule réside dans le fait que si un gradient thermique important existe entre la surface et le centre de la particule, la surface atteint la température de fusion avant le centre. Les effets de l'évaporation à la surface ajoutent une résistance supplémentaire au transfert thermique plasma-particule. L'analyse faite par Bourdin [BOURDIN et Coll., 1983a] montre qu'il faut tenir compte de l'effet de propagation dans la particule lorsque le nombre de Biot (rapport de la conductivité thermique moyenne intégrée du plasma dans la couche limite à la conductivité thermique de la particule) est supérieur à 0.03. Une approche simplifiée qui ne tient pas compte de la conduction dans la particule est souvent adoptée [VARDELLE et Coll., 1986]. Cette approche qui rend bien compte du comportement moyen de la particule, considère la particule isotherme. [BOURDIN et Coll., 1983a] a montré qu'une température uniforme reste valable pour une particule métallique, alors que pour des particules céramiques, des gradients importants se développent entre la surface et le coeur de la particule conduisant à un état où la surface de la particule est en fusion alors que le coeur reste solide. Les mêmes conclusions ont été atteintes par Chen [CHEN et Coll., 1983c] qui a montré que l'approche simplifiée, peut conduire à une sous estimation du temps nécessaire à la fusion de la particule dans le cas des céramiques.

3.2.2 Transfert dans la zone annulaire

Les particules ayant quitté la zone du jet pour retomber dans la zone annulaire ont une température supérieure à la température moyenne des particules dans l'anneau. Le temps de séjour de la particule dans l'anneau est important comparé à son temps de séjour dans la zone du jet. La particule transfère donc son excès d'énergie au reste des particules dans l'anneau. Le transfert de chaleur se fait par conduction inter particules et par convection avec le gaz qui diffuse dans l'anneau. La fonction indirecte de ce dernier est la trempe des particules qui absorbent de la chaleur dans la zone du jet à chaque cycle. Des taux de transfert de chaleur importants entre le jet et le lit peuvent être réalisés par ce mécanisme. En effet, le taux de circulation de solide dans le lit soufflé est élevé de l'ordre de quelques kg/min [EPSTEIN et coll. 1974] et permet de compenser

pour le faible gain en température pour chaque passage dans le jet (quelques degrés) surtout à l'approche du régime permanent.

Les échanges dans la zone annulaire se font par convection avec le gaz en contre-courant et par conduction inter particules. Près de la paroi du réacteur, il y a aussi échange par convection particulaire. L'échange radiatif est considéré négligeable pour $T_b < 600\text{ °C}$ [BOTTERILL, 1975]. Une attention particulière a été accordée dans la littérature à la détermination du coefficient d'échange de chaleur dans les milieux particuliers. Certaines études sont spécifiques aux milieux fixes [LUIKOV et Coll., 1968], [WAKAO et Coll., 1982], d'autres aux milieux fluidisés [MOLERUS, 1993], alors que certaines discutent du milieu particulaire en général [GUPTA et Coll., 1974], [BOTTERILL, 1975], [PRADEEP, 1988]. Les corrélations sont présentées sous forme adimensionnelle ($Nu = f(Pr, Re, Ar, \varepsilon \text{ (porosité du lit)})$).

Pour l'échange de chaleur par conduction et convection dans la zone annulaire du lit soufflé (échange radiatif négligé), c'est les corrélations établies pour les lits fixes qui sont utilisées. Cependant, les conductivités apparentes obtenues par Flamant [FLAMANT, 1990a] dans le lit soufflé par plasma sont respectivement d'un ordre de grandeur et de trois ordres de grandeur supérieures à celles obtenues par le modèle de Luikov [LUIKOV et Coll., 1968] dans le cas du lit fixe dans la direction radiale et axiale. Ce qui permet de conclure, que le traitement de l'anneau dans le lit soufflé comme un lit fixe sous estime le transfert de chaleur, en effet la contribution importante du mouvement particulaire dans l'anneau: de la périphérie vers le centre et du haut vers le bas n'est pas prise en compte. Une estimation adéquate des transfert de chaleur dans l'anneau ne peut être faite que si on peut tenir compte de manière précise de l'hydrodynamique de cette zone ce qui pose le problème de recherche d'un modèle hydrodynamique et de transfert de chaleur adéquat dans le lit soufflé.

3.2.3 Transfert lit - paroi

Dans l'étude des transferts de chaleur en milieux particuliers, beaucoup d'importance a été accordée aux transferts de chaleur entre les parois du réacteur et le milieu granulaire ou entre ce dernier et des objets immergés. En effet les conditions de transfert au voisinage des parois contrôlent le transfert de chaleur du milieu vers l'extérieur (refroidissement) ou de l'extérieur vers

le milieu (chauffage). La puissance, Q , échangée entre le lit à la température T_b et une paroi de surface S_w à la température T_w s'exprime de manière simple, à l'aide de la loi de Newton, en utilisant un coefficient de transfert global lit-paroi, h_w , par:

$$Q = h_w S_w (T_b - T_w) \quad (3.6)$$

La majorité des études discutent des différents mécanismes de transfert impliqués au voisinage de la paroi, de leur importance relative dans différentes conditions: lit fixe, lit fluidisé, ainsi que de l'influence de différents paramètres liés à l'hydrodynamique ou aux caractéristiques des particules pour calculer la valeur du coefficient h_w . Les mécanismes reconnus contribuant au transfert de chaleur lit-paroi sont: Convection et conduction particules-paroi, convection gaz-paroi et rayonnement particules-paroi et gaz-paroi. Les différentes contributions pouvant être calculées séparément et ensuite additionnées.

Kunii et Levenspiel [KUNII et Coll., 1991] ainsi que Borodulya [BORODULYA et Coll., 1991] proposent deux équations générales pour le calcul de h_w , basées sur des données expérimentales. Récemment Flamant et Lu ont analysé les différents phénomènes impliqués dans le transfert entre le lit fluidisé et une paroi. Ils exposent dans [LU et Coll., 1993] un modèle général pour le calcul de h_w . L'approche adoptée utilise le modèle à deux phases: émulsion et bulles établi par Harrisson et Davidson [DAVIDSON et Coll., 1963] ainsi que le concept de renouvellement des paquets de particules au voisinage de la paroi "paquet model" établi par Mickley et Fairbanks [MICKLEY et Coll., 1955]. L'analyse de la contribution du rayonnement est rapportée dans la seconde partie de leur article [FLAMANT et Coll., 1993]. Ce modèle permet d'expliquer les différentes tendances rapportées par ailleurs [BOTTERILL., 1975], [ADAMS et Coll., 1979], [DECKER et Coll., 1983], [MAZZA et Coll., 1988], [CHEN et Coll., 1981] et [MATHUR et Coll., 1987], [SAXENA et Coll., 1989].

- Le transfert de chaleur lit-paroi est une fonction complexe des propriétés physiques du gaz et des particules, de la structure du lit, du mode d'opération et des températures de la paroi et du lit.
- La contribution relative des différents modes au coefficient de transfert global lit-paroi dépend principalement des températures du lit et de la paroi, de la taille des particules, de la vitesse de fluidisation et des propriétés radiatives des particules et de la paroi.

- Le coefficient de transfert global lit-paroi augmente avec la vitesse de fluidisation et atteint un maximum au delà duquel il diminue pour des vitesses de fluidisation plus élevées.
- Le profil de la porosité du lit et le temps de résidence des particules au voisinage de la paroi ont une influence importante sur h_w . Ainsi d'après Botterill [BOTTERILL, 1975], la phase de montée de h_w avec la vitesse de fluidisation est justifiée par la diminution du temps de résidence des particules au voisinage de la paroi à cause de l'intense circulation dans le lit favorisée par les bulles. Alors que la diminution de h_w à des vitesses de fluidisation élevées est justifiée par l'augmentation de la porosité du lit au voisinage de la paroi.
- La contribution du transfert radiatif dépend principalement de la taille des particules et des températures du lit et de la paroi. Les mesures de Saxena [SAXENA et Coll., 1989], montrent que cette contribution varie entre 7 et 35% et augmente avec la taille des particules.
- Dans les lits à particules de grosse taille, la convection gazeuse est dominante alors que dans les lits à particules fines la convection particulaire est dominante.

Dans le cas des lits soufflés, la même tendance du coefficient de transfert de chaleur à la paroi en fonction du débit de gaz a été rapportée [KLASSEN et Coll., 1958], [MALEK et Coll, 1964]. Cependant la valeur maximale du coefficient de transfert est inférieure de 25 à 75% à celle obtenue en lits fluidisés. Il faut noter cependant que les valeurs des débits de gaz correspondants sont inférieurs de 35 à 55% en lit soufflé qu'en lit fluidisé ce qui est en accord avec le fait que pour les grosses particules, la convection gazeuse est le mode de transfert dominant. La corrélation établie par Malek [MALEK et coll, 1964] pour les lits soufflés à basse température reste la plus utilisée pour l'estimation de h_w dans le lit soufflé [EPSTEIN et Coll, 1974].

De manière générale les valeurs des coefficients de transfert de chaleur lit-paroi pour les lits soufflés sont supérieures à celles obtenues en lits fixes et inférieures à celles obtenues en lits fluidisés [KLASSEN et Coll., 1958]. L'augmentation de la température du lit augmente le coefficient de transfert de chaleur à la paroi à cause de la contribution du transfert radiatif et de l'augmentation des coefficients de transport du gaz [YOSHIDA et Coll., 1974].

3.3 Bilan Énergétique global

Le schéma de répartition de l'énergie à partir de la source électrique jusqu'au rejet des gaz vers l'extérieur du réacteur est présenté en figure 3.1.

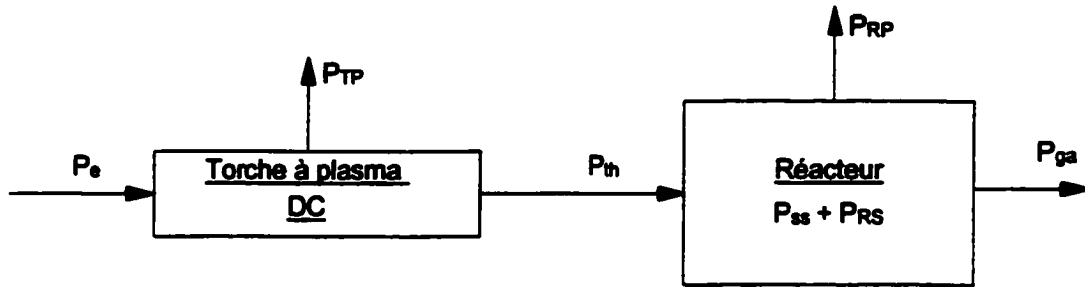


Figure 3.1 Schéma de répartition de l'énergie électrique

- P_e est la puissance électrique délivrée par l'alimentation.
- P_{TP} est la puissance perdue au niveau de la torche. Cette perte est due au refroidissement par l'eau de la cathode et de l'anode.
- P_{th} est la puissance thermique nette transférée au jet de plasma à la sortie de la torche.
- P_{RP} est la puissance perdue au niveau du réacteur. Les pertes sont dues au refroidissement par l'eau des différentes parties du réacteur: colonne cylindrique, couvercle et circuit de sortie des gaz ; elles sont dues aussi à la convection autour des éléments non refroidis et au rayonnement des parties assez chaudes vers l'environnement.
- P_{RS} et P_{SS} sont les puissances stockées respectivement dans la carcasse du réacteur et dans le solide granuleux.
- P_{ga} est la puissance véhiculée par les gaz à la sortie du réacteur.

3.4 Bilan sur la torche

L'énergie électrique dissipée dans l'arc s'écrit:

$$P_e = V \cdot I \quad (3.7)$$

Le courant d'arc est réglable à partir du panneau de contrôle. Il est mesuré par un ampèremètre installé dans le panneau de contrôle et par un circuit électronique incorporé à la carte d'acquisition.

La tension aux bornes de l'arc n'est pas contrôlée, elle varie avec le débit et la nature du gaz plasmagène. Elle est mesurée par un voltmètre installé dans le panneau de contrôle et par la carte d'acquisition.

La puissance perdue au niveau de la torche, P_{TP} , est déterminée par la mesure du débit d'eau de refroidissement \dot{m}_{et} et des températures d'entrée et de sortie d'eau T_{ee} et T_{es} .

$$P_{TP} = \dot{m}_{et} C_{pe}(T_{es} - T_{ee}) \quad (3.8)$$

Le rendement thermique de la torche est donné par:

$$\eta = \frac{(P_e - P_{TP})}{P_e} \quad (3.9)$$

et la puissance disponible dans le jet à la sortie de l'anode est donnée par:

$$P_{th} = \eta \cdot P_e = P_e - P_{TP} \quad (3.10)$$

3.4.1 Variation de la tension avec le débit de gaz et le courant d'arc

Il est difficile de prévoir de manière exacte l'allure de la caractéristique $V = f(I)$ d'une torche à plasma DC. La torche utilisée dans cette étude ne comporte pas de procédé de stabilisation (magnétique, par transpiration ou autre). Le gaz plasmagène injecté près de la cathode comporte une composante tangentielle et contribue à la stabilisation de l'arc. La caractéristique $V = f(I)$ dépend fortement de la nature de l'interaction de la dynamique du gaz avec l'arc. Du fait des courants utilisés ($I > 50A$) l'arc généré est classé dans les arcs à intensité élevée. Pour ce type d'arc, la littérature prévoit une caractéristique à pente nulle ou ascendante et le système de génération n'a pas besoin d'un circuit de stabilisation. Pfender [PFENDER, 1987] rapporte une corrélation dans le cas d'arc libre à haute intensité ($200 \leq I \leq 2300 A$) sous argon avec une anode refroidie à l'eau :

$$V = 4.3I^{0.25}l^{0.3} \quad (3.11)$$

où V est la tension d'arc en volts, I est le courant en A et l est la longueur d'arc en cm.

PATEYRON [PATEYRON, 1987] a pu corréler ses résultats de mesure de la tension en fonction du courant et du débit de gaz pour une torche de type ARCOS (semblable à celle utilisée dans le cadre de ce travail) opérée sous argon par:

$$V = 0.748 + 2.25I^{0.116} \dot{Q}_g^{0.54} \quad (3.12)$$

où \dot{Q}_g est le débit de gaz en SLPM. Les deux corrélations reflètent l'augmentation de la tension avec le débit de gaz pour un courant donné. En effet l'augmentation du débit de gaz conduit à une augmentation de la longueur d'arc. Pour les champs des débits et courants exploités lors des études faites dans le présent travail, les caractéristiques tension - courant relevées pour la torche utilisée sont présentées en figure 3.2 pour l'argon pure et dans la figure 3.3 pour un mélange Ar/N₂ à 20 % N₂.

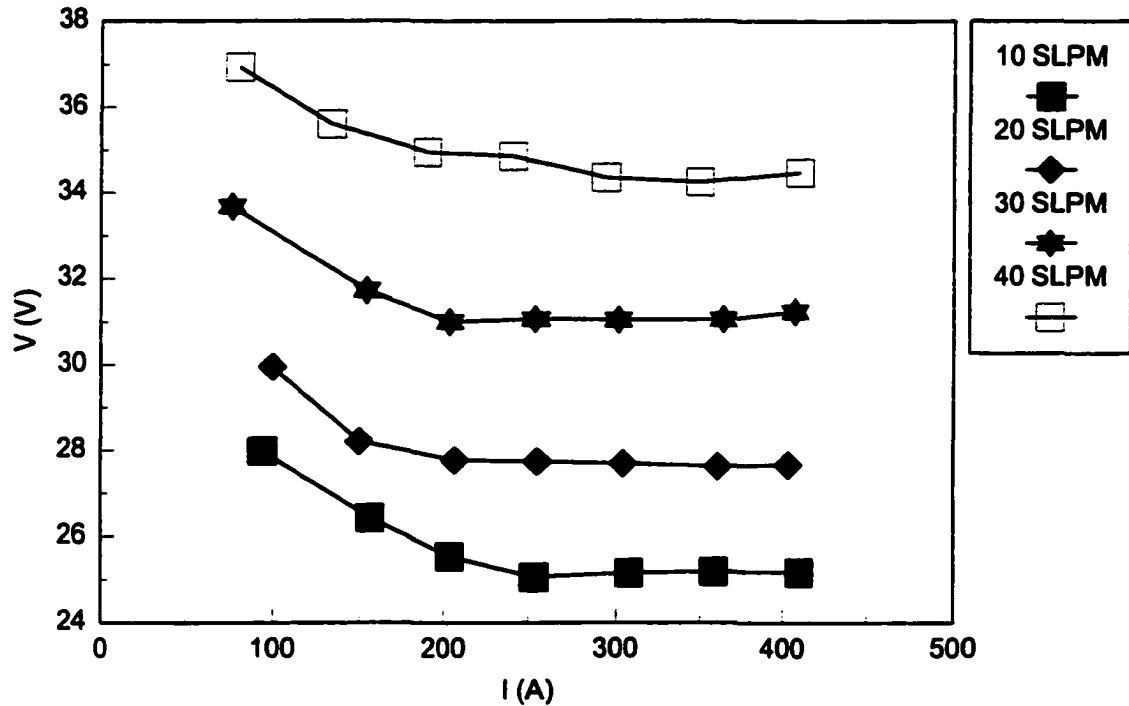


Figure 3.2 Caractéristiques tension-courant pour différents débits d'argon

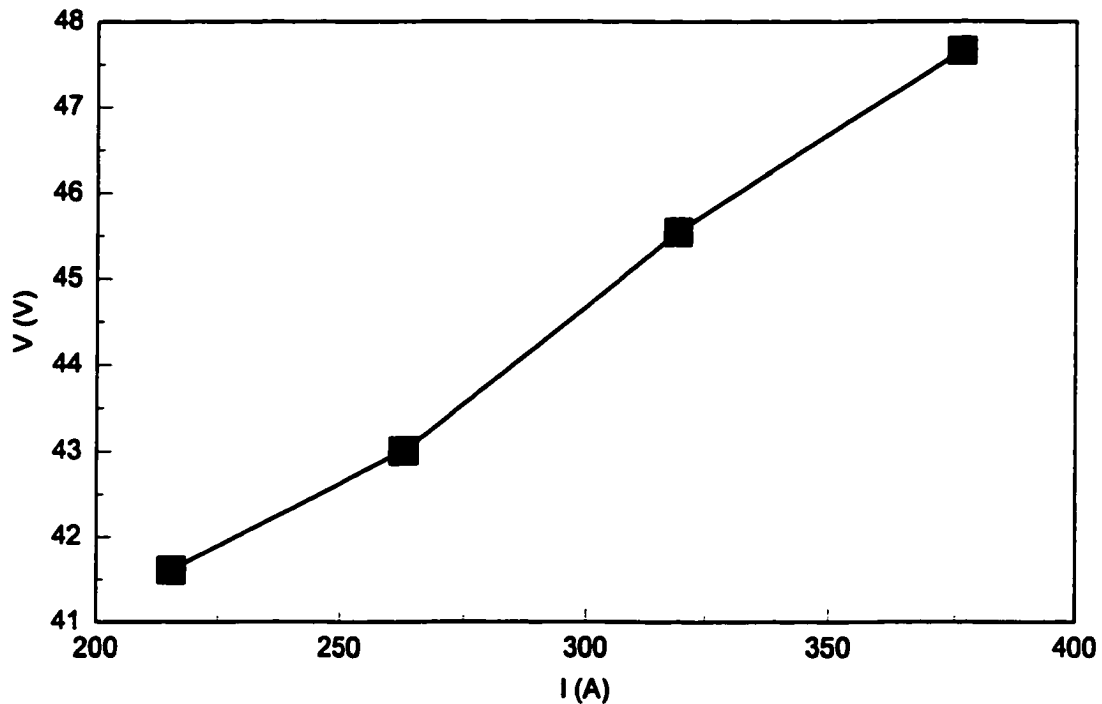


Figure 3.3 Caractéristique courant - tension pour un mélange Ar/N₂ à 20% N₂ et un débit de gaz de 20 SLPM.

Dans le cas de l'argon, la figure 3.2 montre que les caractéristiques sont descendantes pour $I \leq 200$ A. Au delà, les caractéristiques sont à pente quasi nulle. La tendance descendante en dessous de 50A (en fait 200 A dans notre cas) est aussi observée dans le cas de torches à stabilisation par écoulement vortex [PFENDER, 1987]. Cette tendance pour les caractéristiques lors d'opération sous argon a conduit au choix d'une valeur $I \approx 300$ A lors de l'étude de l'hydrodynamique du réacteur (chapitre 2) afin d'assurer une meilleur stabilité de l'arc.

Lorsqu'un mélange Argon/Azote à 20% d'azote est utilisé, les caractéristique sont ascendantes comme illustré en figure 3.3 pour un débit de 20 SLPM. Le choix d'un courant d'environ 275 A lors de l'étude de l'hydrodynamique a été dicté dans ce cas par le soucis de limitation de l'érosion de la cathode qui devient importante à courant élevé.

3.4.2 Influence du % de N₂

L'influence du % N₂ dans un mélange Ar/N₂ sur la tension d'arc et sur la puissance électrique dissipée dans la torche pour un courant fixé à 274 ± 4 A est présentée en figures 3.4 et 3.5.

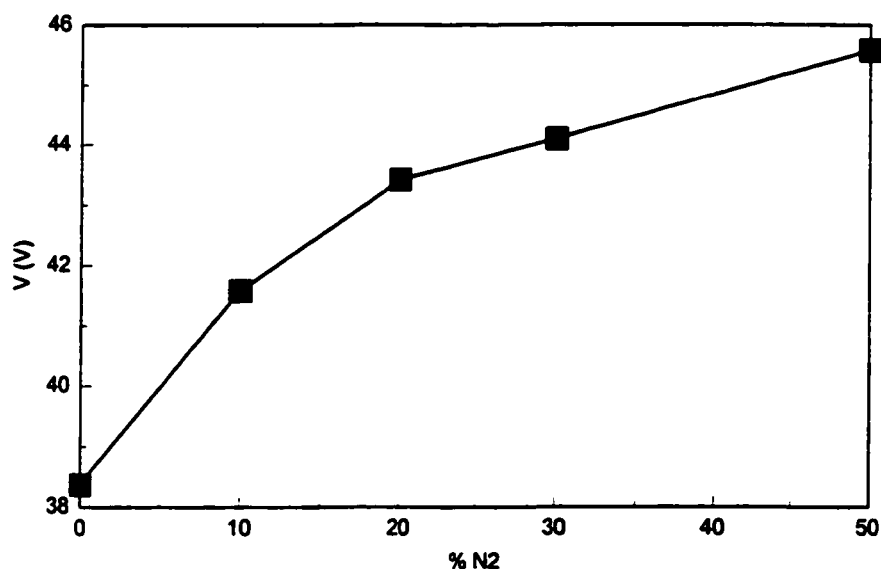


Figure 3.4 Influence du % N₂ dans un mélange Ar/N₂ sur la tension d'arc pour un courant d'arc fixé à 274 ± 4 A et un débit total de 20 SLPM.

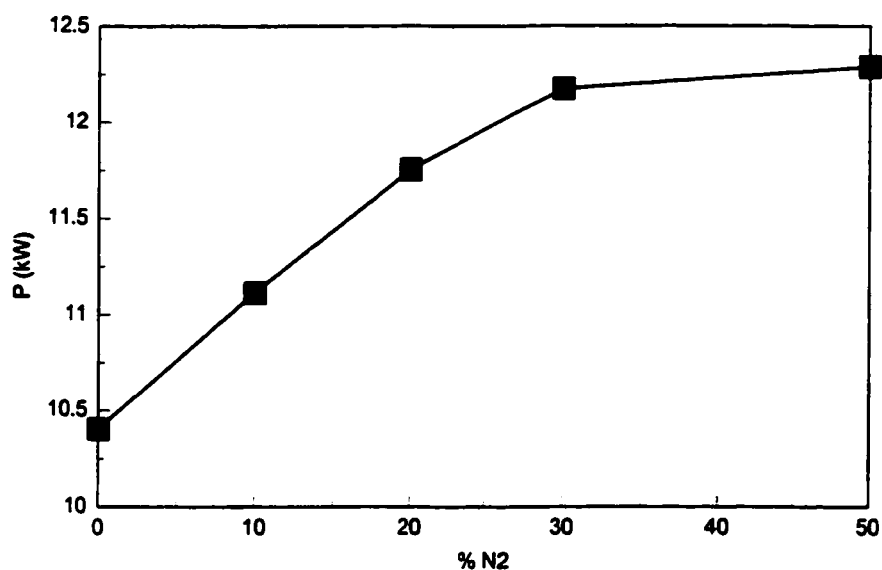


Figure 3.5 Influence du % N₂ dans un mélange Ar/N₂ sur la puissance électrique dissipée dans la torche pour un courant d'arc fixé à 274 ± 4 A et un débit total de 20 SLPM.

À cause de la conductivité thermique élevée de l'azote comparée à celle de l'argon, l'augmentation du pourcentage de l'azote dans un mélange argon/azote a pour effet une augmentation de sa conductivité thermique. L'effet de cette augmentation se traduit par un refroidissement de la colonne d'arc et une diminution de la conductivité électrique, ce à quoi répond la décharge électrique pour maintenir le même courant par une augmentation du champs électrique par unité de longueur d'arc, soit une augmentation de la tension et donc aussi de la puissance dissipée dans l'arc [RAIZER, 1991].

3.4.3 Rendement énergétique et puissance disponible

Les figures 3.6 et 3.7 représentent respectivement la variation du rendement énergétique de la torche et la puissance disponible dans le jet en fonction du débit d'argon pour un courant fixé à 320 ± 5 A.

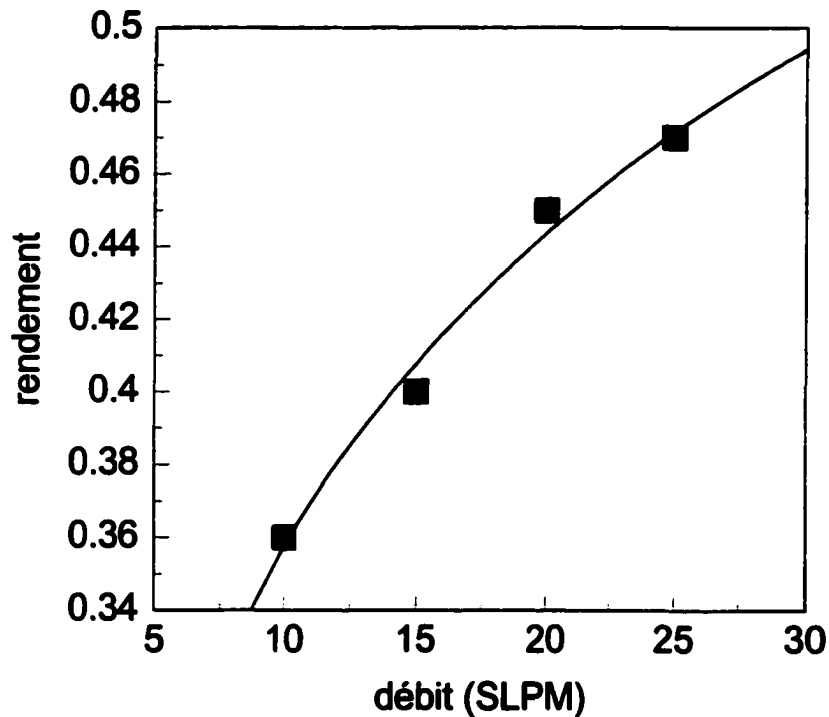


Figure 3.6 Variation du rendement énergétique de la torche en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A.

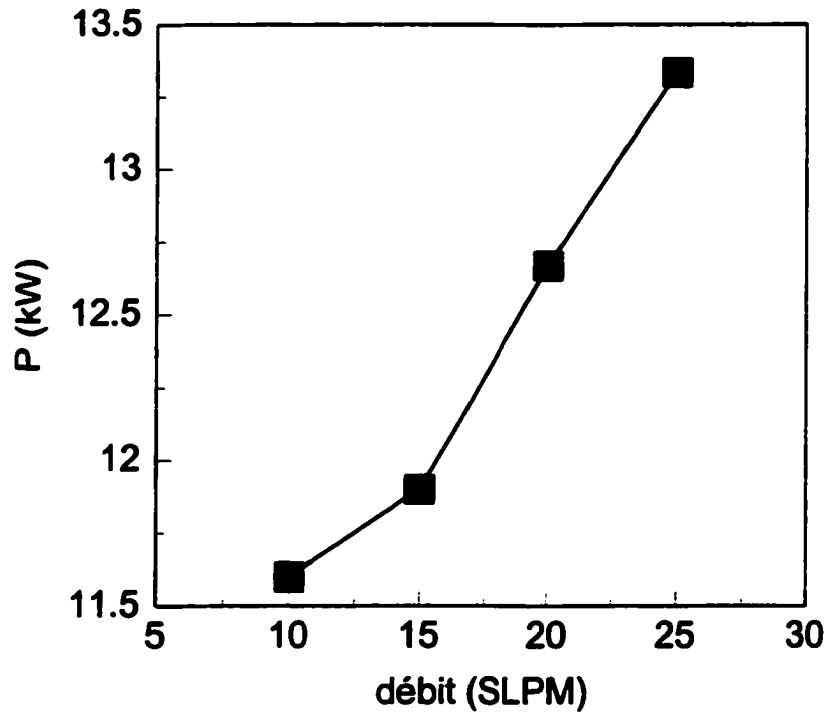


Figure 3.7 Variation de la puissance disponible dans le jet en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A.

Les figures 3.8 et 3.9 représentent respectivement la variation du rendement énergétique de la torche et la puissance disponible dans le jet en fonction du débit de gaz pour le mélange Ar/N₂ à 20% de N₂ et un courant fixé à 274 ± 4 A.

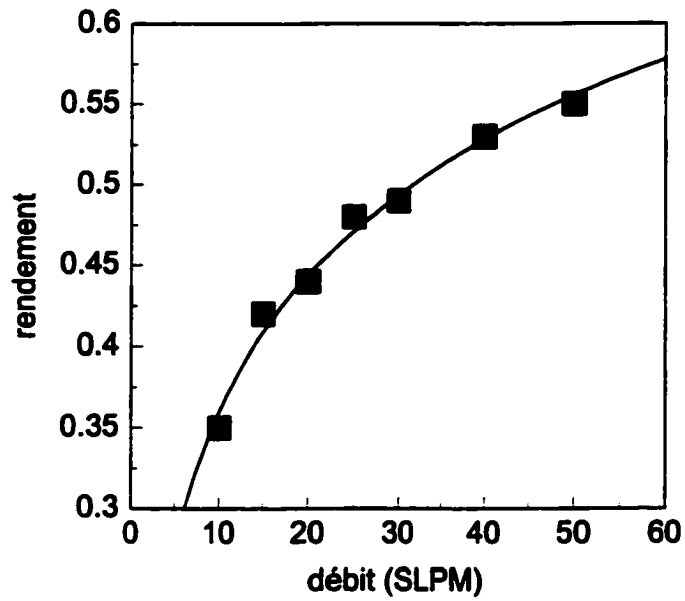


Figure 3.8 Variation du rendement énergétique de la torche en fonction du débit de gaz pour un mélange Ar/N₂ à 20 % N₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A.

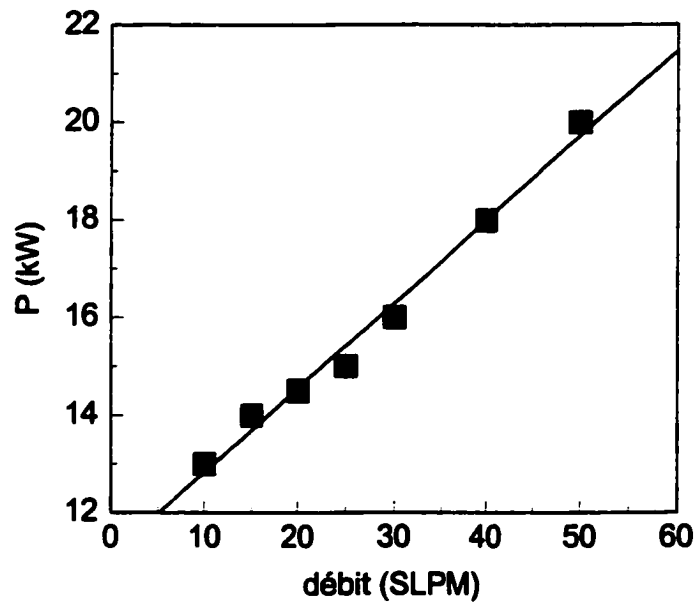


Figure 3.9 Variation de la puissance disponible dans le jet en fonction du débit de gaz pour un mélange Ar/N₂ à 20 % N₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A.

3.4.4 Enthalpie spécifique, température enthalpique et vitesse du jet

Les figures 3.10, 3.11 et 3.12 représentent respectivement la variation de l'enthalpie spécifique, température enthalpique et vitesse moyenne du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A.

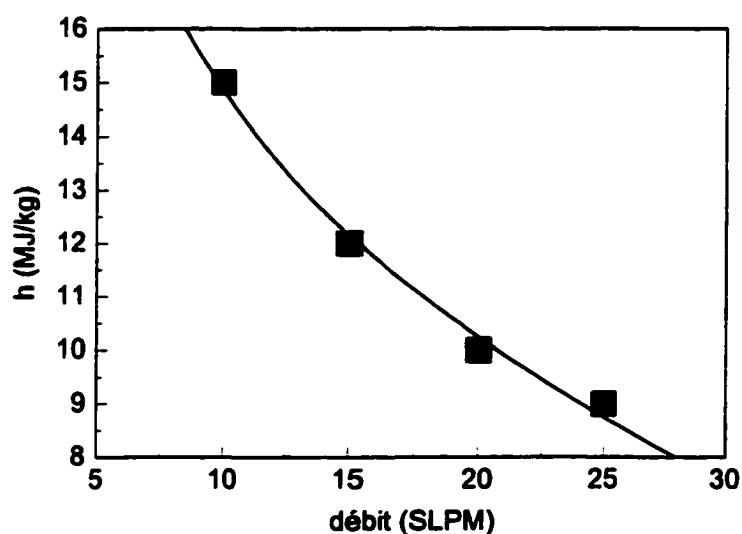


Figure 3.10 Variation de l'enthalpie spécifique du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A.

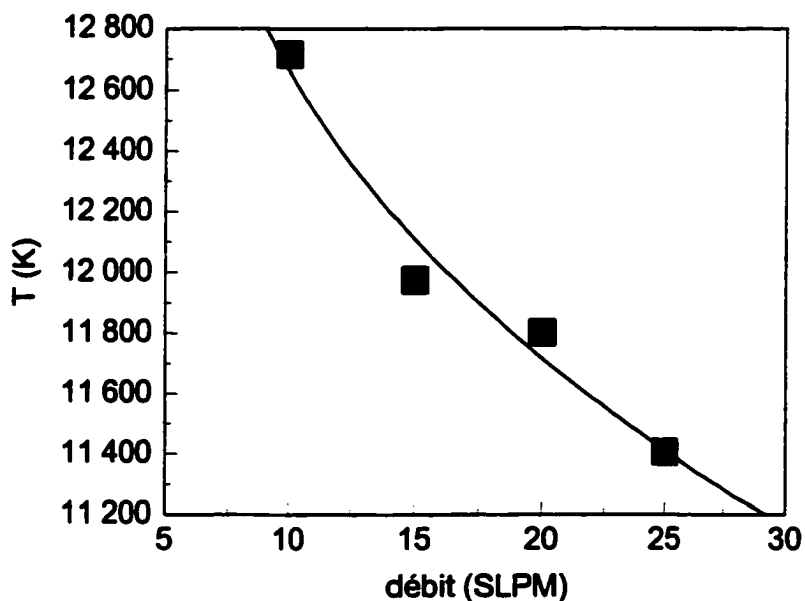


Figure 3.11 Variation de la température enthalpique du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A

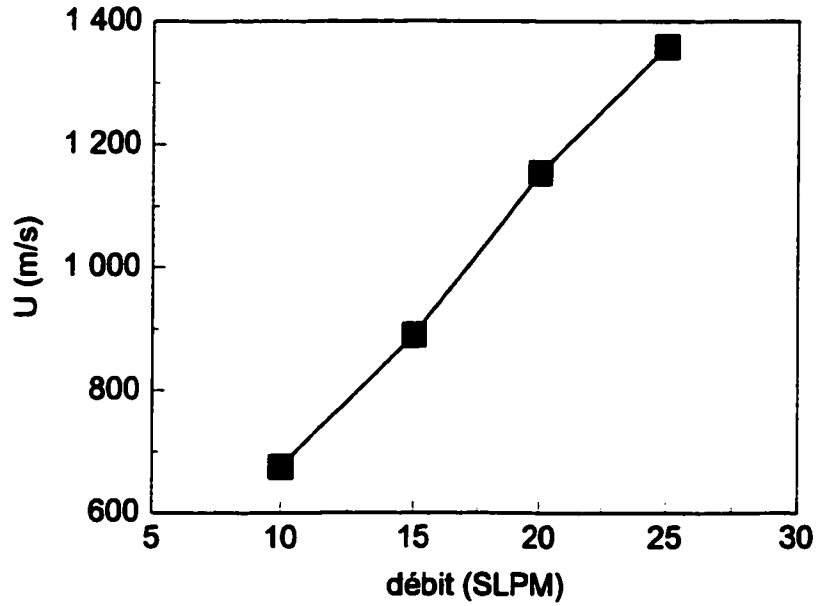


Figure 3.12 Variation de la vitesse moyenne du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour l'argon pure et pour un courant fixé à 320 ± 5 A.

L'enthalpie spécifique est obtenue à partir de la puissance disponible dans le jet à la sortie de l'anode P_{th} . Cette dernière est obtenue par bilan calorimétrique sur la torche comme expliqué avant.

$$h = \frac{P_{th}}{\dot{m}_g} \quad (3.13)$$

La température enthalpique du jet à la sortie de l'anode est ensuite obtenue à partir de la banque de données issue de la référence [BOULOS et coll., 1994]. Les données dans ces tables sont fournies par incrément de 100 °C et pour l'argon pure et l'azote pure. Un programme d'interpolation a été créé pour le calcul des caractéristiques du mélange et pour les températures intermédiaires.

La vitesse du jet est obtenue par:

$$U = \frac{\dot{m}_g}{\rho_g(T) \cdot S_i} \quad (3.14)$$

La densité du gaz ρ_g est calculée connaissant la température enthalpique T. S_i est la section de la sortie de l'anode.

Les figures 3.13 à 3.15 représentent respectivement la variation de l'enthalpie spécifique, de la température enthalpique et de la vitesse moyenne du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour le mélange Ar/N₂ à 20 % N₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A.

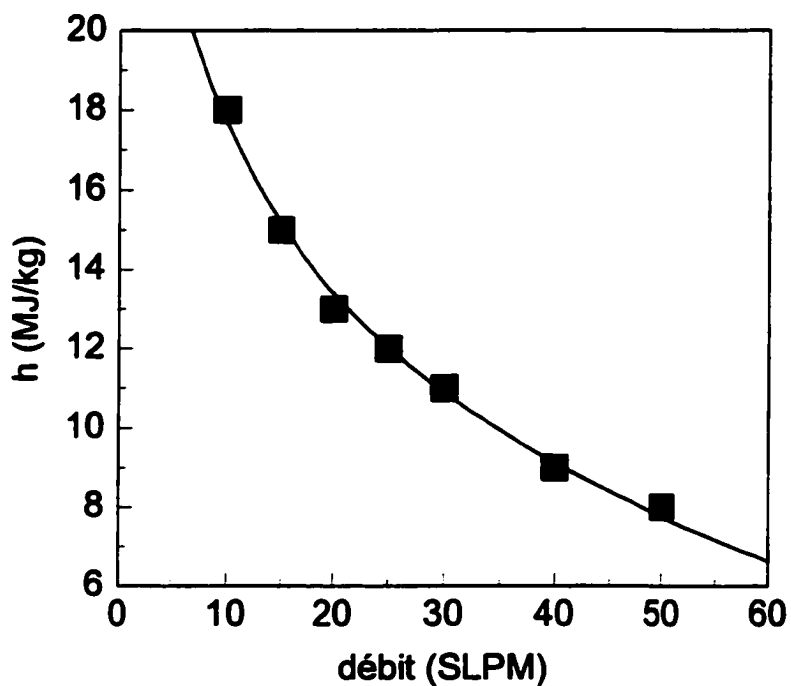


Figure 3.13 Variation de l'enthalpie spécifique du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour un mélange Ar/N₂ à 20% N₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A

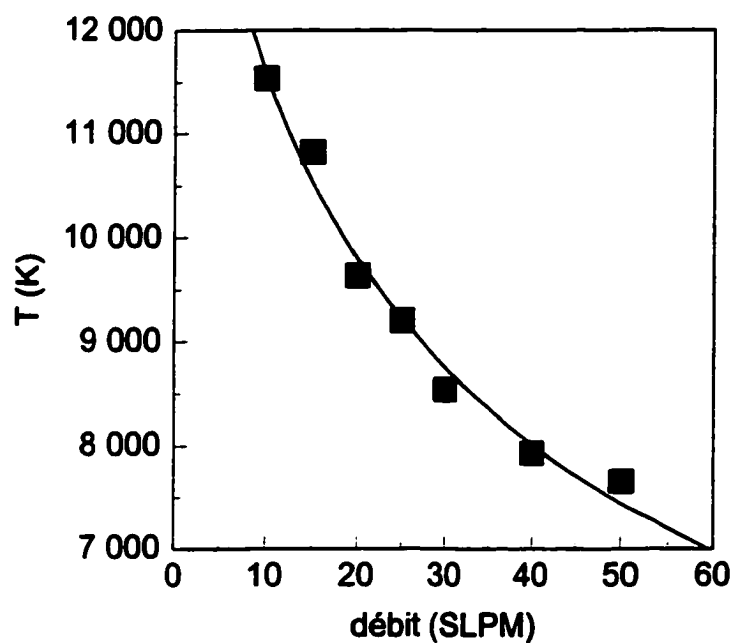


Figure 3.14 Variation de la température enthalpique du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour un mélange Ar/N₂ à 20% N₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A

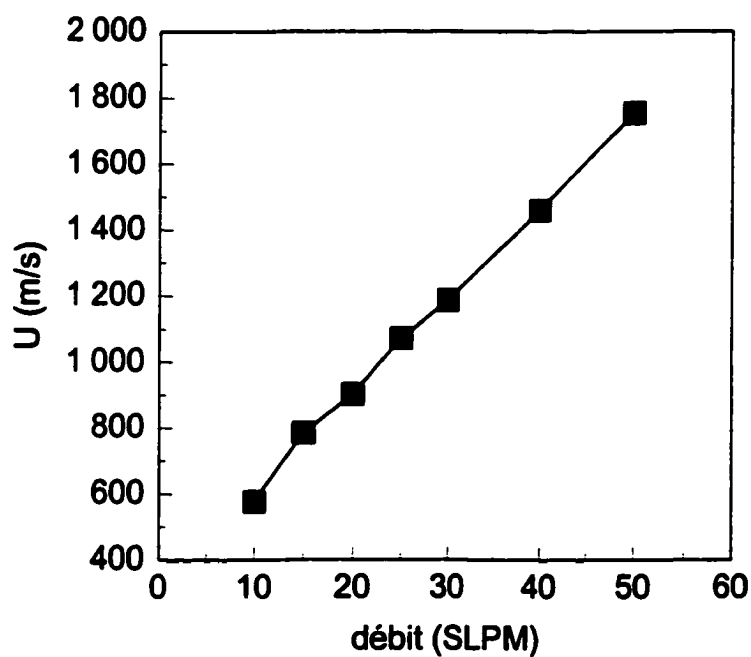
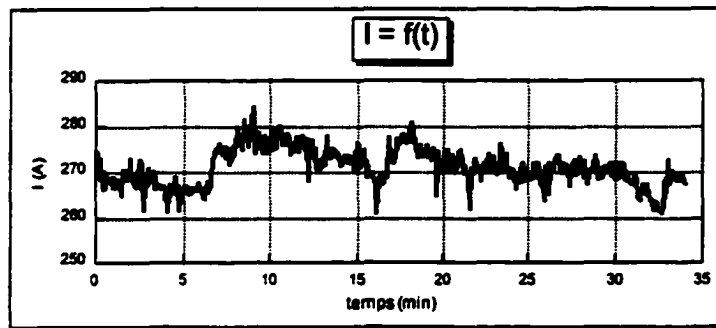


Figure 3.15 Variation de la vitesse moyenne du jet à la sortie de l'anode en fonction du débit de gaz pour un mélange Ar/N₂ à 20% N₂ et pour un courant fixé à 274 ± 4 A

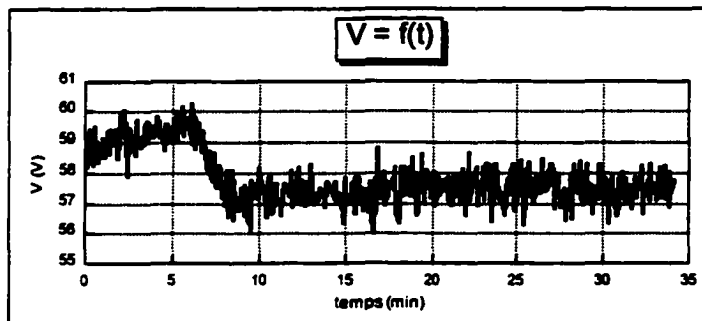
3.4.5 Influence des fluctuations du courant et de la tension d'arc

Les valeurs présentées ci-avant sont les valeurs moyennes obtenues au cours des expériences de bilan sur la torche. Chaque point de mesure est une moyenne sur une période d'environ 5 min. Le système d'acquisition permet d'avoir 20 mesures par minute pour chacune des grandeurs mesurées. L'acquisition quasi-continue des différentes grandeurs: courant, tension et températures d'entrée et de sortie de l'eau, permet de voir les fluctuations des différentes grandeurs notamment le courant et la tension d'arc et de calculer les fluctuations induites sur les grandeurs à la sortie du jet telles que la température enthalpique et la vitesse moyenne du jet.

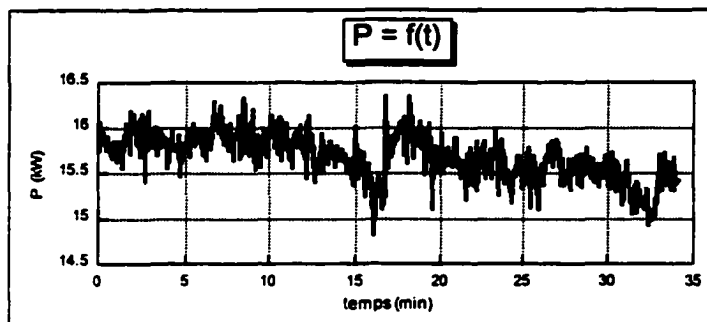
À titre d'exemple les fluctuations de courant et de la tension ainsi que les fluctuations de la puissance et du rendement de la torche sont présentées dans les figures 3.16 a, , b, c et d pour l'expérience menée avec Al_2O_3 Grit 30 avec un débit de 25 SLPM. Les fluctuations de la puissance disponible dans le jet P_{a} , de l'enthalpie spécifique, de la température enthalpique du plasma et de sa vitesse moyennes à la sortie de l'anode sont présentées dans les figures 3.17 a, b, c et d pour la même expérience



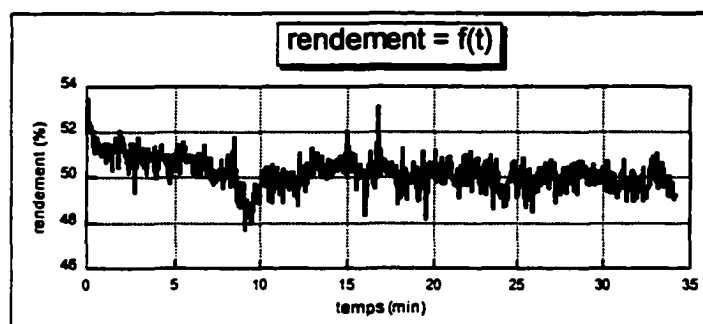
(a)



(b)

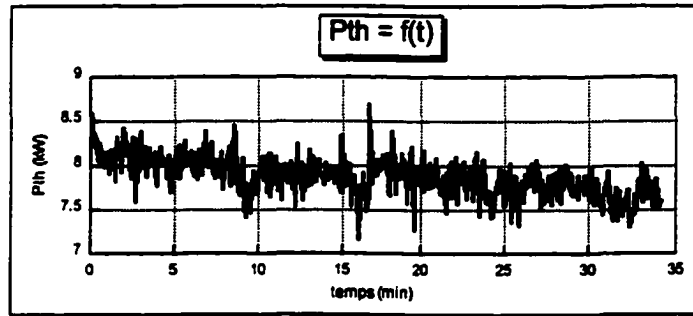


(c)

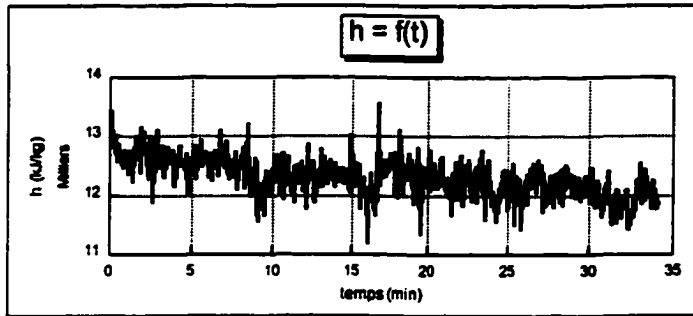


(d)

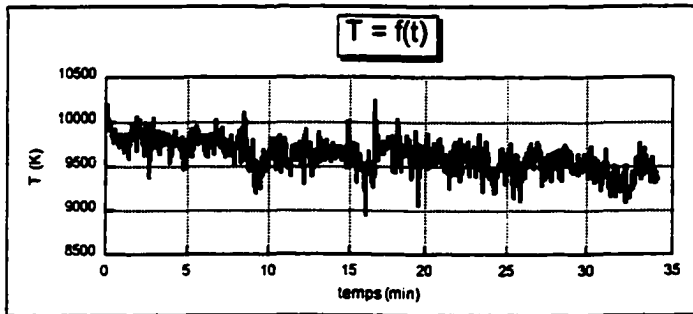
Figure 3.16 Fluctuations mesurées au cours d'une expérience menée avec Al_2O_3 , Grit 30, débit Ar/N_2 (20% N_2) 25 SLPM: (a) courant, (b) tension, (c) puissance, (d) rendement de la torche.



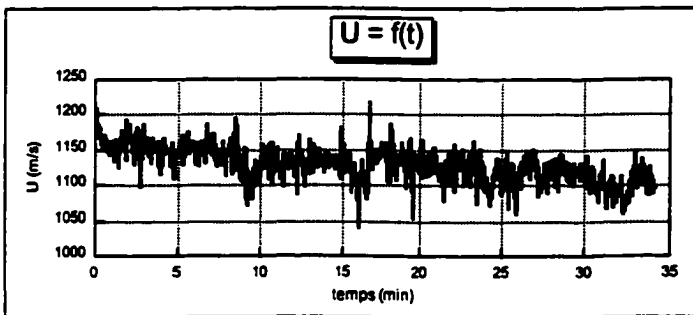
(a)



(b)



(c)



(d)

Figure 3.17 Fluctuations des grandeurs moyennes à la sortie de l'anode au cours d'une expérience menée avec Al_2O_3 Grit 30, débit Ar/N_2 (20% N_2) 25 SLPM: (a) puissance disponible dans le jet, (b) enthalpie spécifique moyenne, (c) température enthalpique moyenne, (d) vitesse moyenne du jet.

Dans cet exemple on voit qu'une fluctuation de courant $\Delta I = \pm 5A$ et une fluctuation de voltage $\Delta V = \pm 1V$ associées à des fluctuations de rendement de la torche $\Delta \eta = \pm 0.1$ induisent une fluctuation de la température enthalpique $\Delta T = \pm 250K$ et une fluctuation de la vitesse du jet $\Delta U = \pm 30$ m/s. Ces fluctuations ne sont pas très importantes dans ce cas, cependant une attention particulière doit être accordée à la stabilisation des grandeurs qui les induisent à savoir le courant d'alimentation, la chute de tension dans l'arc et le rendement énergétique de la torche afin d'assurer la stabilité hydrodynamique du lit soufflé.

3.5 Bilan sur le réacteur

En se référant à la figure 3.1, le bilan énergétique sur le réacteur s'écrit:

$$P_{th} = \eta P_e = P_{SS} + P_{RS} + P_{RP} + P_{ga} \quad (3.15)$$

Les différentes quantités ont été préalablement définies.

L'énergie stockée dans le réacteur ($P_{SS} + P_{RS}$) peut être exprimée à l'aide de la température moyenne du solide T_b et de celle de la carcasse du réacteur T_R par:

$$P_{SS} = m_b C_{pS} \frac{dT_b}{dt} \quad (3.16)$$

et

$$P_{RS} = m_R C_{pR} \frac{dT_R}{dt} \quad (3.17)$$

où C_{pR} et m_R sont respectivement la capacité calorifique et la masse de la carcasse du réacteur ; C_{pS} et m_b sont respectivement la capacité calorifique et la masse du solide.

En régime permanent l'énergie stockée dans le réacteur est nulle.

Les pertes au niveau du réacteur peuvent être divisées en:

- pertes dues au refroidissement à l'eau des éléments du réacteur, P_{RR} . Ces pertes sont mesurées et,
- pertes dues au rayonnement et convection autour des éléments du réacteur non refroidis, P_{Ri} . Ces pertes ne sont pas mesurées. Ainsi:

$$P_{RP} = P_{RR} + P_{Ri} \quad (3.18)$$

3.6 Bilan sur le solide

En toute rigueur, il faut traiter la zone annulaire et la zone du jet séparément. Cette approche se heurte cependant à la méconnaissance des échanges entre l'anneau et le jet. Du bas vers le haut du lit, le gaz diffuse du jet vers le lit et les particules solides sont entraînées de l'anneau vers le jet. Une approche simple, bien adaptée à un bilan global, analogue à celle adoptée pour les lits fluidisés consiste à utiliser pour chaque tranche dz les valeurs moyennées sur l'anneau et le jet pour les différentes grandeurs impliquées dans le bilan énergétique sur une tranche de lit dz . Cette approche s'appuie sur les hypothèses suivantes:

- Écoulement piston du gaz à travers le lit ($T_g = T_g(z)$).
- Mixage parfait du solide (tout le lit est représenté par une seule température T_b).
- Gradients intraparticules négligés.

Avant d'écrire le bilan sur le solide, il serait intéressant de pouvoir estimer la température du gaz à la sortie du lit.

3.6.1 Température du gaz à la sortie du lit

Le bilan énergétique sur le gaz pour une tranche dz illustré dans la figure 3.18 s'écrit:

$$\rho_g C_{pg} \epsilon_z S_z \frac{dT_g}{dt} = - \dot{m}_g C_{pg} dT_g - h_p S_{pz} (T_g - T_b) \quad (3.19)$$

où h_p est le coefficient d'échange plasma - particule et S_{pz} est la surface totale des particules dans la tranche dz .

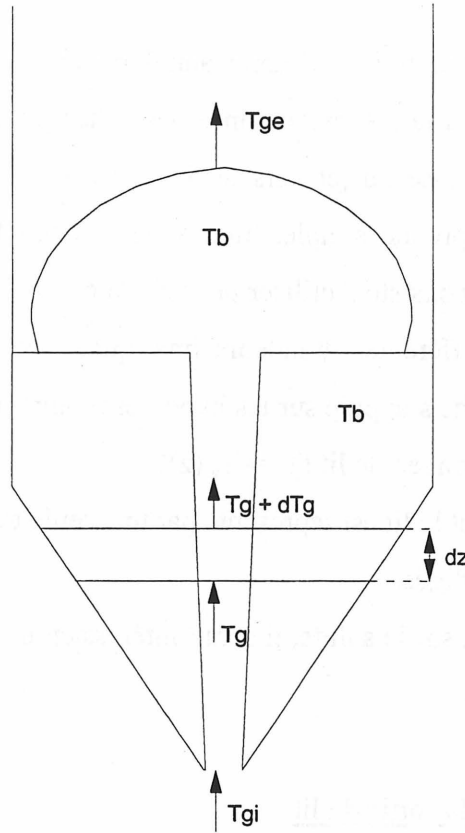


Figure 3.18 Bilan énergétique sur le gaz pour une tranche dz

Si les particules sont considérées sphériques, S_{pz} s'écrit:

$$S_{pz} = \frac{6}{d_p} (1 - \epsilon_z) S_z dz \quad (3.20)$$

En régime permanent l'équation (3.19) s'écrit:

$$\frac{d(T_g - T_b)}{(T_g - T_b)} = -\frac{6h_p}{d_p \dot{m}_g C_{pg}} (1 - \epsilon_z) S_z dz \quad (3.21)$$

Cette équation intégrée entre la base et la surface du lit au minimum de soufflage (Hauteur de la fontaine nulle) donne une relation utile pour l'estimation de la température de sortie du gaz T_{ge} en fonction de sa température d'entrée T_{gi} et des autres paramètres caractéristiques du lit:

$$\frac{(T_{ge} - T_b)}{(T_{gi} - T_b)} = \exp\left(-\frac{6h_p}{d_p \dot{m}_g C_{pg}} \frac{m_b}{\rho_s}\right) \quad (3.22)$$

où m_b et ρ_s sont respectivement la masse de solide chargée dans le réacteur aux conditions de minimum de soufflage et la densité intrinsèque du solide.

La quantité $\frac{(T_{ge}-T_b)}{(T_{gi}-T_b)}$ a été calculée en utilisant l'équation (3.22) et les paramètres correspondant au minimum de soufflage au cours des expériences effectuées. Même dans les conditions les plus défavorables: débit de gaz élevé (50 SLPM, diamètre de particule le plus grand ($d_p = 1.64$ mm) et h_p estimé à partir de la corrélation établie pour la zone annulaire (équation 1. 10), cette quantité est pratiquement nulle ($\approx 10^{-10}$). Donc on peut considérer que dans les conditions d'opération pratiques utilisées dans le présent travail, le gaz quitte le lit à la température moyenne du lit T_b . Par la suite, on considérera que $T_{ge} = T_b$.

3.6.2 Bilan sur le solide

On s'intéresse à l'évolution de la température moyenne du lit en fonction des conditions d'opération et du temps. La température atteinte après établissement du régime permanent est la température maximale réalisable dans les conditions d'opération fixées.

Le schéma de la figure 3.19 illustre le bilan sur le solide avec les différentes pertes thermiques qui sont considérées.

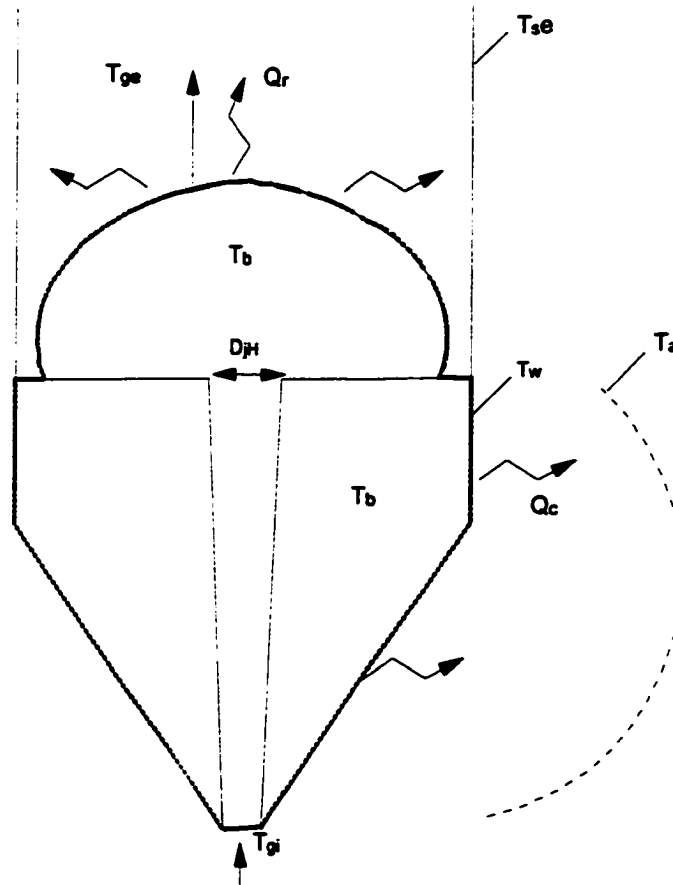


Figure 3.19 Illustration du bilan sur le solide

On distingue entre les pertes thermiques du solide jusqu' à la hauteur du lit, limitée dans les conditions opératoires à la partie conique du réacteur, et les pertes par le solide dans la fontaine vers les parois du réacteur.

Évaluation des pertes thermiques

pertes dans la partie occupée par le lit

Les pertes thermiques dans la zone occupée par le lit, Q_c , sont dues essentiellement à l'échange lit - paroi du réacteur à la température T_w et à la convection et rayonnement de la paroi vers l'environnement à la température T_a .

$$Q_c = h_w S_w (T_b - T_w) = h_{global} S_w (T_b - T_a) \quad (3.23)$$

où:

S_w est la surface externe de la base du réacteur occupée par le solide,

T_w est la température moyenne de la paroi à la base du réacteur occupée par le lit,

h_w est le coefficient d'échange de chaleur lit - paroi,

h_{global} est le coefficient d'échange global entre le lit et l'environnement à la base du réacteur occupée par le lit.

La figure 3.20 illustre le schéma électrique pour les pertes thermique de la partie occupée par le lit.

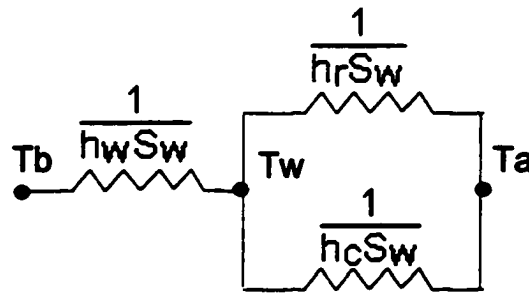


Figure 3.20 Schéma électrique des pertes thermiques dans la partie occupée par le lit.

h_r est le coefficient de pertes par rayonnement de la paroi à la température T_w vers l'environnement à la température T_a .

D'après le schéma électrique de la figure 3.20, le coefficient de perte global s'écrit:

$$h_{global} = \frac{h_w(h_r + h_c)}{h_w + h_r + h_c} \quad (3.24)$$

h_r est calculé en considérant l'échange radiatif entre une surface grise (paroi du réacteur en acier, $\epsilon_{acier} = 0.55$) et l'ambiance à la température T_a . Dans ce cas h_r est donné par:

$$h_r = \sigma \epsilon_{acier} (T_w + T_a)(T_w^2 + T_a^2) \quad (3.25)$$

σ est la constante de Stephan - Boltzmann. T_w , température moyenne de la paroi à la base du réacteur, a été mesurée au cours des expériences: $T_w \approx 150$ °C. Le coefficient d'échange radiatif entre la paroi à la base du réacteur et l'ambiance est alors estimé à 6 W/m²K.

Le coefficient d'échange convectif entre la paroi du réacteur et l'ambiance est estimé à partir de corrélations rapportées par Incropera [INCROPERA et coll., 1990] pour de l'air en convection naturelle autour d'une surface cylindrique verticale. Pour $T_w = 150$ °C, et l'air à la température ambiante, h_c est estimé à 8 W/m²K.

h_w , coefficient de transfert de chaleur lit - paroi est estimé à partir de la corrélation établie par Malek et Lu [MALEK et coll., 1964].

$$\frac{h_w d_p}{k_f} = 0.54 \left(\frac{d_p}{H} \right)^{0.17} \left(\frac{d_p^3 \rho_f^2 g}{\mu^2} \right)^{0.52} \left(\frac{\rho_b C_{p_s}}{\rho_f C_{p_f}} \right)^{0.45} \left(\frac{\rho_f}{\rho_b} \right)^{0.08} \quad (1.10)$$

Cette corrélation utilisée pour Al₂O₃ Grit 30, dans les conditions de minimum de soufflage, permet de calculer les valeurs de h_w listées dans le tableau 3.1. Les propriétés physiques du fluide sont calculées à la température de film prise égale à $\frac{T_{gi} + T_b}{2}$.

TABLEAU 3.1 VALEURS DE h_w CALCULÉES À PARTIR DE L'ÉQUATION 1.10 DANS LES CONDITIONS DE MINIMUM DE SOUFFLAGE (poudre Al₂O₃ Grit 30, cône 40°).

Débit volumique du gaz (SLPM)	T_{gi} (K)	m_b (kg)	H (m)	h_w (W/m²K)
15	10 821	1.41	0.16	158.44
20	9 636	2.35	0.19	119.67
25	9 203	3.35	0.22	130.82
30	8 541	4.98	0.27	113.24

Comme montré par le tableau 3.1, le coefficient de transfert lit - paroi varie très peu dans la gamme d'opération du réacteur. Une valeur moyenne de 130 W/m²K est une bonne estimation de h_w dans les conditions d'opération. Le coefficient de perte global à la base du réacteur en utilisant les valeurs de h_c , h_c et h_w estimées ci dessus est de: 13 W/m²K.

Pertes par rayonnement au dessus du lit

Les pertes au dessus du lit sont occasionnées par les particules dans la fontaine. Ces particules à haute températures perdent de l'énergie par rayonnement vers les parois (partie cylindrique du réacteur) maintenue à la température de sortie de l'eau de refroidissement T_{cs} .

($T_{es} \approx T_a$). Soit S_{pf} la surface totale des particules présentes dans la fontaine à tout instant (régime permanent). La puissance perdue par rayonnement de la fontaine, Q_{Rf} , s'écrit:

$$Q_{Rf} = S_{pf} h_{rf} (T_b - T_a) \quad (3.26)$$

où h_{rf} est le coefficient d'échange par rayonnement qui peut être exprimé à l'aide d'une équation analogue à (3.25):

$$h_{rf} = \sigma \epsilon_p (T_b + T_a) (T_b^2 + T_a^2) \quad (3.27)$$

La masse de particules présentes dans la fontaine m_f peut s'exprimer par:

$$m_f = \dot{w}_{cr} \tau_f \quad (3.28)$$

où τ_f est le temps de séjour des particules dans la fontaine et \dot{w}_{cr} est le taux de circulation du solide au dessus du lit ; c'est aussi le débit massique total de solide qui sort dans le jet à la sortie du lit.

$$\dot{w}_{cr} = \frac{\pi}{4} D_{jH}^2 \rho_s (1 - \epsilon_{jH}) U_{pjH} \quad (3.29)$$

Dans cette expression U_{pjH} est la vitesse des particules dans le jet à la sortie du lit, ϵ_{jH} est la porosité du jet à la surface du lit et D_{jH} est le diamètre du jet à la sortie du lit. Comme suggéré par Grace [GRACE et coll. 1978], τ_f peut être exprimé de manière simple en fonction de la vitesse U_{pjH} par:

$$\tau_f = \frac{2U_{pjH}}{g} \quad (3.30)$$

Cette expression simple est obtenue en considérant que la particule éjectée à la sortie du jet à la vitesse U_{pjH} est en chute libre dans la fontaine sous l'action de la pesanteur (la force de traînée est négligée).

D'autre part avec la même considération U_{pjH} peut être exprimée en fonction de la hauteur de la fontaine H_f par:

$$U_{pjH} = \sqrt{2gH_f} \quad (3.31)$$

Pour des particules sphériques de diamètre d_p , la surface totale des particules dans la fontaine S_{pf} est reliée à leur masse m_f exprimée dans l'équation 3.28 par: $S_{pf} = \frac{m_f}{\rho_s} \frac{6}{d_p}$.

En combinant les équations 3.28 à 3.31, La surface totale des particules dans la fontaine peut être exprimée en fonction de la hauteur de celle ci et du diamètre et porosité du jet à la sortie du lit par:

$$S_{pf} = \frac{6}{d_p} \pi (1 - \varepsilon_{jH}) D_{jH}^2 H_f \quad (3.32)$$

Température moyenne du lit

L'équation de bilan énergétique en régime transitoire pour l'ensemble du lit considéré à la température T_b , en tenant compte des pertes dans la zone conique Q_c et dans la zone au dessus du lit (fontaine) Q_R s'écrit:

$$m_b C_{ps} \frac{dT_b}{dt} = \dot{m}_g C_{pg} (T_{gi} - T_b) - Q_R - Q_c \quad (3.33)$$

et en utilisant les expressions de Q_c et Q_R (équations 3.23 et 3.26), l'équation différentielle pour le calcul de T_b s'écrit:

$$m_b C_{ps} \frac{dT_b}{dt} = \dot{m}_g C_{pg} (T_{gi} - T_b) - S_{pf} h_{rf} (T_b - T_a) - h_{global} S_w (T_b - T_a) \quad (3.34)$$

Cette équation est intégrée avec la condition initiale: à $t = 0$, $T_b = T_{b0} = T_a$. On obtient:

$$T_b = T_{gi} - (T_{gi} - T_a) \left[1 - \frac{\lambda}{\delta} (1 - \exp(-\delta t)) \right] \quad (3.35)$$

avec :

$$\lambda = \frac{\dot{m}_g C_{pg}}{m_b C_{ps}} \quad (3.36)$$

et

$$\delta = \frac{\dot{m}_g C_{pg}}{m_b C_{ps}} + \frac{h_{rf} S_{pf}}{m_b C_{ps}} + \frac{h_{global} S_w}{m_b C_{ps}} \quad (3.37)$$

L'expression 3.35 se réduit à l'expression 3.38 (cas adiabatique) lorsque les pertes thermiques sont nulles ($\lambda = \delta$).

$$T_b = T_{gi} + (T_{gi} - T_a) \exp\left(-\frac{\dot{m}_g C_{pg}}{m_b C_{ps}} t\right) \quad (3.38)$$

Dans les figures 3.21 et 3.22 sont rapportées les courbes d'évolution de la température moyenne du lit dans les deux cas : réacteur adiabatique et réacteur non adiabatique et pour les conditions typiques de la catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30 au minimum de soufflage avec l'angle de cône 40° . Les conditions et valeurs utilisées sont rapportées dans le tableau 3.1. ci avant.

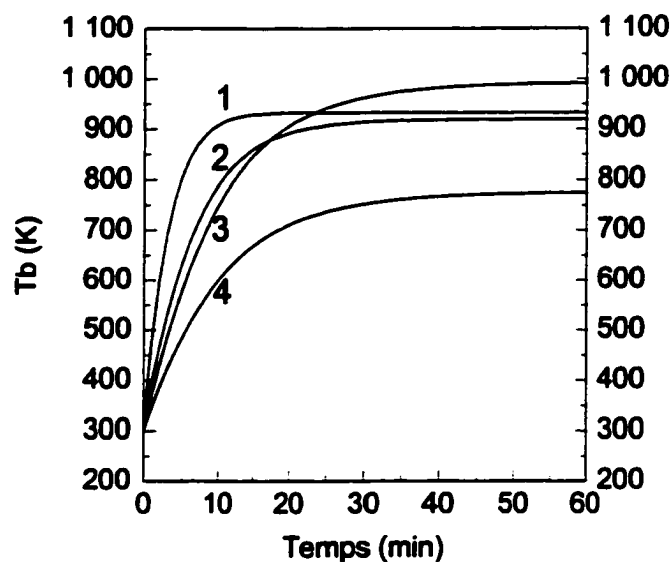


Figure 3.21 Évolution théorique de la température du lit en fonction du temps dans le cas non adiabatique d'après l'équation 3.35 pour les conditions opératoires au minimum de soufflage avec la catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30. 1: 15 SLPM, 2: 20 SLPM, 3: 25 SLPM, 4: 30 SLPM.

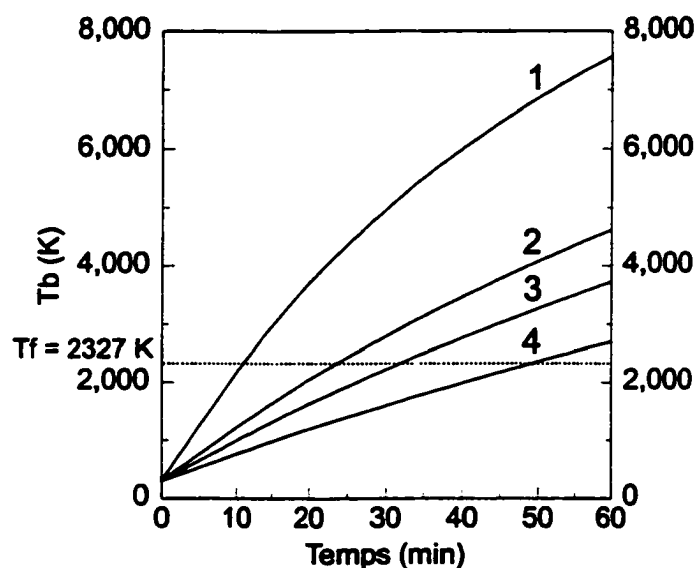


Figure 3.22 Évolution théorique de la température du lit en fonction du temps dans le cas adiabatique d'après l'équation 3.38 pour les conditions opératoires au minimum de soufflage avec la catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30. 1: 15 SLPM, 2: 20 SLPM, 3: 25 SLPM, 4: 30 SLPM. (---- représente le point de fusion de l'alumine)

La température de fusion de l'alumine α concernée est de 2327 K, les courbes présentées en figures 3.22 concernent en fait un solide hypothétique de même propriétés physiques (C_p et ρ_s) que l'alumine mais avec une température de fusion infinie.

Selon l'équation 3.38, la température d'équilibre atteinte par le solide après l'établissement du régime permanent est la température enthalpique du gaz à l'entrée du réacteur T_{gi} . Cependant le régime permanent est lent à atteindre. Après une heure, d'après la figure 3.22, le rapport T_b/T_{gi} varie de 30 à 70% selon le cas simulé.

La température d'équilibre que peut atteindre le solide dans le cas réel du réacteur non adiabatique est déduite de l'équation 3.32 pour $t = +\infty$.

$$T_b = T_a + \frac{\lambda}{\delta}(T_{gi} - T_a) \quad (3.40)$$

Cette équation peut servir à estimer la température moyenne du lit pour différentes conditions d'opération.

La figure 3.21 montre que la température d'équilibre est atteinte assez rapidement, au bout d'un temps de l'ordre de 20 min. Il faut noter que comparativement au cas adiabatique, les pertes thermiques baissent considérablement la température maximale qu'on peut atteindre sous les différentes conditions.

3.6.3 Mesures des pertes thermiques

Procédure

Les pertes thermiques dans les deux parties du réacteur sont mesurées par calorimétrie. Un circuit d'eau permet de récupérer la chaleur perdue à travers les parois dans la zone conique (partie occupée par le lit) et dans la zone cylindrique, couvercle et circuit de sortie des gaz. Les températures d'entrée et de sortie d'eau pour les deux zones ainsi que le débit d'eau sont mesurés de manière continue durant l'opération du réacteur. Le schéma de la figure 3.23 illustre le circuit de refroidissement d'eau ainsi que les zones du réacteur qui sont refroidies ou non.

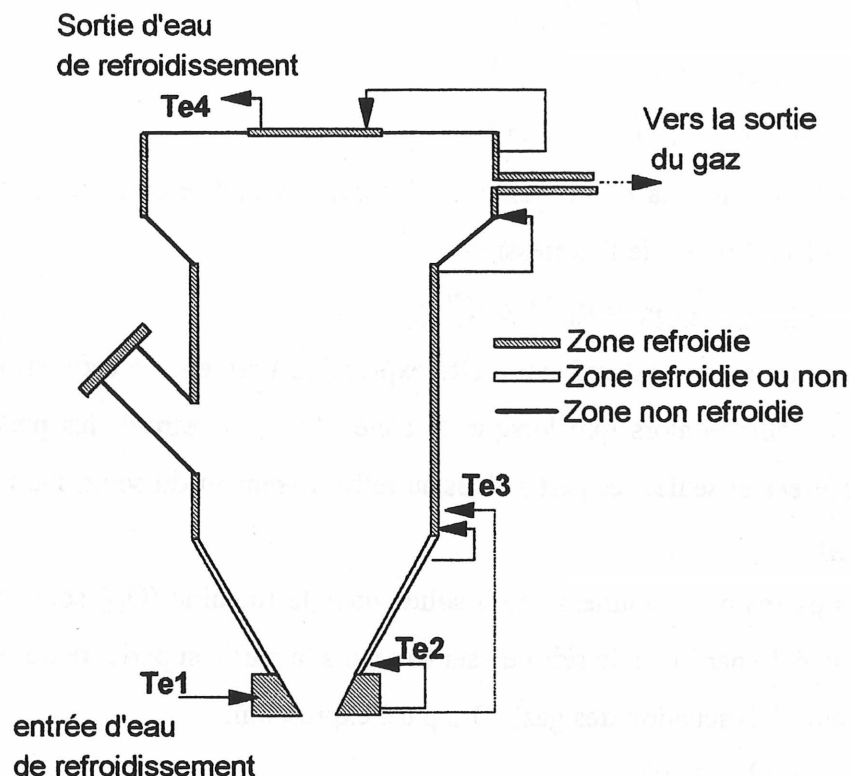


Figure 3.23 Schéma du circuit de refroidissement du réacteur

Le refroidissement est fait en série. L'eau rentre dans le socle de support de la torche à la température T_{e1} et en sort à la température T_{e2} . Lorsque la zone conique est refroidie, l'eau y rentre à la température T_{e2} et en sort à la température T_{e3} . Dans le cas où cette zone n'est pas refroidie, elle est court-circuitée et $T_{e2} = T_{e3}$. L'eau rentre dans la zone supérieure du réacteur (colonne cylindrique, couvercle, circuit d'évacuation des gaz) à la température T_{e3} et en sort à la température T_{e4} . Seule la zone centrale du couvercle du réacteur est refroidie. Le conduit de rattachement de la fenêtre de quartz à la colonne n'est pas refroidi. Au cours des bilans effectués, cette zone ainsi que la partie conique sont isolées de l'extérieur à l'aide d'une couche de 2 cm de polyuréthane.

Trois thermistors sont utilisés pour mesurer les différentes températures. Dans le cas où le cône est refroidi, T_{e1} , T_{e3} et T_{e4} sont mesurées et dans le cas où le cône n'est pas refroidi, T_{e1} , T_{e2} ($= T_{e3}$) et T_{e4} sont mesurées.

Les différentes quantités de chaleur déduites de ces mesures sont explicitées ci-dessous.

$$Q_{12} = \dot{m}_{er} C_{pe}(T_{e2} - T_{e1}) \quad (3.41)$$

$$Q_{23} = \dot{m}_{er} C_{pe}(T_{e3} - T_{e2}) \quad (3.42)$$

$$Q_{34} = \dot{m}_{er} C_{pe}(T_{e4} - T_{e3}) \quad (3.43)$$

Les pertes dans la partie basse du réacteur incluant le cône et le socle support de la torche sont calculées à partir de l'expression:

$$Q_c = Q_{12} + Q_{23} = \dot{m}_{er} C_{pe}(T_{e3} - T_{e1}) \quad (3.44)$$

Lorsque le cône est refroidi, cette expression permet une estimation correcte des pertes dans la zone conique alors que lorsque le cône n'est pas refroidi les pertes dans le cône ne sont pas mesurées et seules les pertes dues au refroidissement du socle support de la torche sont mesurées (Q_{12}).

Les pertes par rayonnement du solide dans la fontaine (Q_{Rf}) sont reliées à la quantité de chaleur récupérée par l'eau de refroidissement dans la partie supérieure du réacteur (colonne, couvercle et circuit d'évacuation des gaz), Q_{34} , par l'expression:

$$Q_{34} = Q_{Rf} + \Delta h_{ge} \quad (3.45)$$

où Δh_{ge} est la différence d'enthalpie du gaz entre la sortie du lit à la température T_{ge} ($T_{ge} = T_b$) et la sortie du réacteur (évacuation) à la température T_s .

$$\Delta h_{ge} = \dot{m}_g h_{ge} \quad (3.46)$$

h_{ge} est l'enthalpie spécifique du gaz à la température de sortie du lit T_{ge} . L'enthalpie spécifique du gaz à la température T_s est nulle (enthalpie de référence).

Deux bilans énergétiques ont été faits dans le cas de deux expériences similaires avec le cône refroidi et le cône non refroidi. Les conditions opératoires ont été choisies de telle manière que le lit de particules occupe exactement la partie conique du réacteur dans des conditions proches du minimum de soufflage (hauteur de fontaine ≈ 15 cm). Les résultats de ces deux bilans sont exposés et analysés ci-après.

Bilan énergétique avec cône refroidi

Les résultats de mesure des pertes et bilan énergétique sur le réacteur au cours d'une expérience dans laquelle le cône est refroidi sont exposés ci dessous. Le tableau 3.2 résume les conditions opératoires.

TABLEAU 3.2

CONDITIONS OPÉRATOIRES AU COURS D'UNE EXPÉRIENCE DE BILAN SUR LE RÉACTEUR AVEC CÔNE REFROIDI. (Cône 40°, poudre Al_2O_3 Grit 30).

Gaz plasmagène	Nature	Débit (SLPM)			
	Ar/N ₂ (20% N ₂)	25			
Solide granuleux	Nature	Charge totale (kg)	Vitesse de charge (g/min)		
	Al ₂ O ₃ , Grit 30	2, 956	104		
débit d'eau <i>m_{er}</i> (LPM)	5,8 - 6,1				
Puissance	<i>I_{moy}</i> (A)	<i>V_{moy}</i> (V)	<i>Pe_{moy}</i> (kW)	<i>η_{moy}</i> (%)	<i>Pth_{moy}</i> (kW)
	277	62	17,15	57	9,8
Température	du gaz <i>T_g</i> (K)	du solide <i>T_b</i> (K)			
	9 872	873			

Au cours de l'expérience, comme relaté ci-haut, le courant et la tension fluctuent et les valeurs présentées dans le tableau ci-dessus sont des valeurs moyennes au cours de l'expérience. L'évolution de la puissance dissipée dans l'arc P_e et de la puissance thermique véhiculée par le gaz à la sortie de l'anode P_a sont présentées dans la figure 3.24. La figure 3.25 présente l'évolution des puissances mesurées Q_{34} et Q_c ainsi que de la puissance résiduelle Q_{res} définie par :

$$Q_{res} = P_{th} - (Q_c + Q_{34}) \quad (3.47)$$

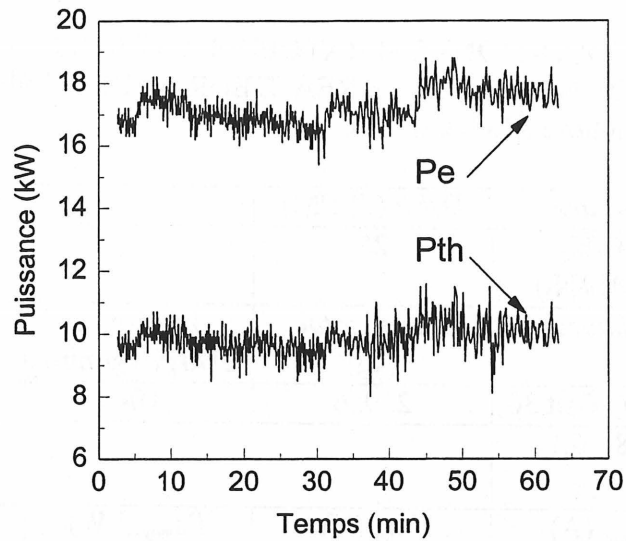


Figure 3.24 Évolution des puissances P_e et P_{th} au cours de l'expérience de bilan énergétique sur le réacteur avec cône refroidi. (les conditions opératoires sont rapportées dans le tableau 3.2).

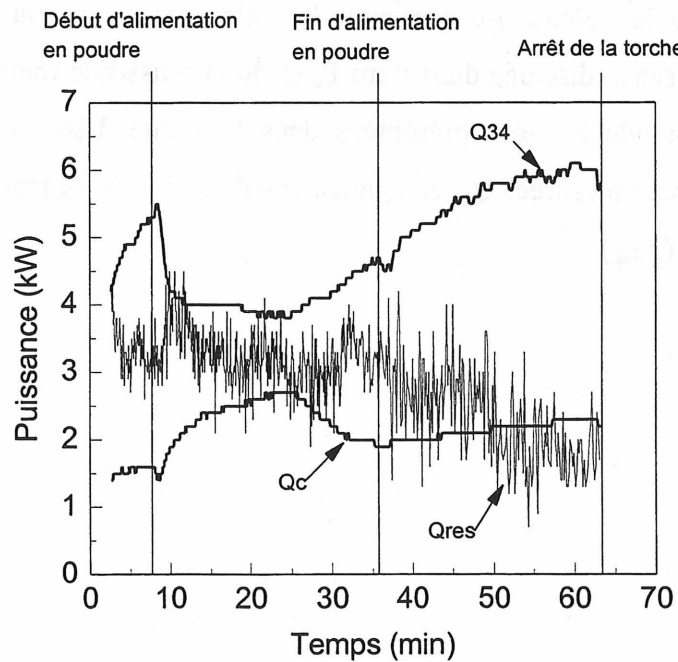


Figure 3.25 Évolution des puissances Q_c , Q_{34} et Q_{res} au cours de l'expérience de bilan énergétique sur le réacteur avec cône refroidi.

Les fluctuations dans Q_{res} sont dues au fait que c'est ce terme qui absorbe les fluctuations de P_{th} .

Bilan énergétique avec cône non refroidi

Les résultats de mesure des pertes et bilan énergétique sur le réacteur au cours d'une expérience dans laquelle le cône n'est pas refroidi sont exposés ci dessous. Le tableau 3.3 résume les conditions opératoires.

TABLEAU 3.3 **CONDITIONS OPÉRATOIRES AU COURS D'UNE EXPÉRIENCE DE BILAN SUR LE RÉACTEUR AVEC CÔNE NON REFROIDI. (Cône 40°, poudre Al_2O_3 Grit 30)**

Gaz plasmagène	Nature	Débit (SLPM)			
	Ar/N ₂ (20% N ₂)	25			
Solide granuleux	Nature	Charge totale (kg)	Vitesse de charge (g/min)		
	Al ₂ O ₃ , Grit 30	3, 05	80		
débit d'eau <i>m_{er}</i> (LPM)	6 - 6,5				
Puissance	<i>I_{moy}</i> (A)	<i>V_{moy}</i> (V)	<i>Pe_{moy}</i> (kW)	<i>η_{moy}</i> (%)	<i>Pth_{moy}</i> (kW)
	271	63	17,1	56	9,53
Température	du gaz <i>T_g</i> (K)	du solide <i>T_b</i> (K)			
	9 688	923			

La figure 3.26 représente l'évolution de la puissance électrique dissipée dans l'arc P_e et de la puissance thermique véhiculée par le gaz à la sortie de l'anode P_a . La figure 3.27 représente l'évolution des puissances mesurées par calorimétrie Q_{12} et Q_{34} ainsi que de la puissance résiduelle Q_{res} déduite de la relation:

$$Q_{res} = P_{th} - (Q_{12} + Q_{34}) \quad (3.48)$$

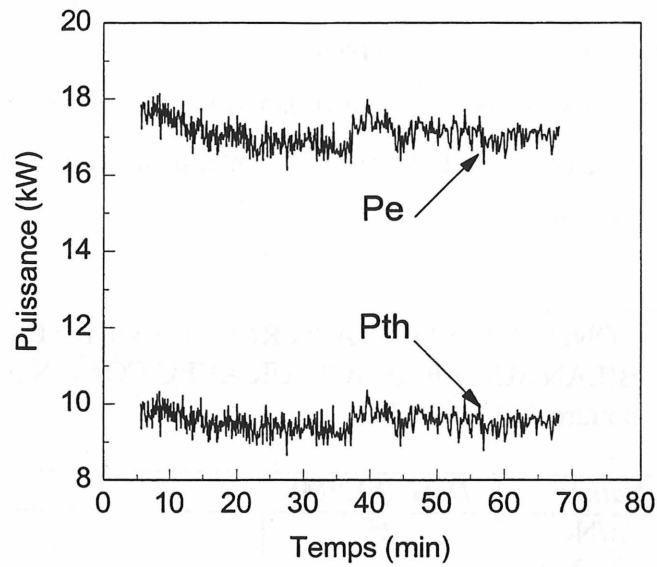


Figure 3.26 Évolution des puissances P_e et P_{th} au cours de l'expérience de bilan énergétique sur le réacteur avec cône non refroidi. (les conditions opératoires sont rapportées dans le tableau 3.3).

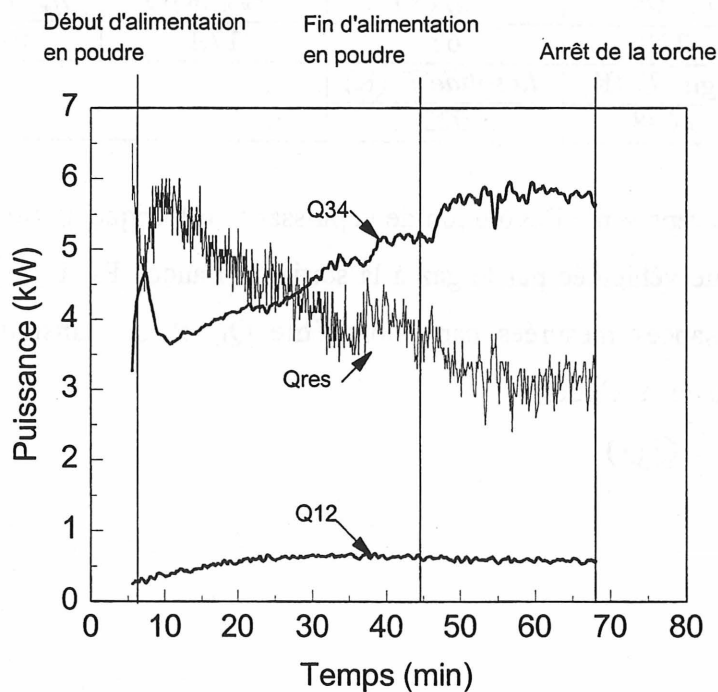


Figure 3.27 Évolution des puissances Q_{12} , Q_{34} et Q_{res} au cours de l'expérience de bilan énergétique sur le réacteur avec cône non refroidi.

Analyse des bilans

D'après l'évolution des différentes puissances (voir figures 3.25 et 3.27), le régime permanent est considéré établi après $t = 55$ min. À partir des deux bilans énergétiques, en état de régime permanent, les différentes puissances déterminées sont rapportées dans le tableau 3.4 ci-dessous.

TABEAU 3.4 PUISSANCES MESURÉES ET CALCULÉES À PARTIR DES DEUX BILANS ÉNERGÉTIQUES: CÔNE REFROIDI ET NON REFROIDI.

	P_a (kW)	Q_{12} (kW)	Q_{23} (kW)	Q_{34} (kW)	Q_{res} (kW)	Q_c (kW)	Δh_{pa} (kW)	Q_{Rf} (kW)	P_{Rf} (kW)
Bilan cône refroidi	9.803	0,587*	1,655*	5,913	1,887*	2,242	0,267*	5,646*	1,887*
Bilan cône non refroidi	9,534	0,587	1,286*	5,760	3,173*	1,872*	0,291*	5,469*	1,887*

Les valeurs marquées par un astérisque dans le tableau sont calculées à partir des différentes relations notées ci-haut alors que celles non marquées sont mesurées.

Le tableau 3.5 résume le calcul de Q_R , en utilisant les équations 3.26 à 3.32. La hauteur de la fontaine au cours des deux expériences de bilan a été mesurée grâce à un repérage du niveau du lit et du sommet de la fontaine, à travers la fenêtre d'observation, par la sonde utilisée pour la mesure de température. La valeur de Q_R calculée est comparée aux valeurs mesurées.

TABEAU 3.5 RÉSUMÉ DE CALCUL DE Q_R AVEC LES VALEURS UTILISÉES ET COMPARAISON AVEC Q_R MESURÉS.

	H_f (m)	D_{jH} (m)	ϵ_{jH}	S_{pf} (m ²)	T_{bf} (K)	ϵ_p	h_{rf} (W/m ² K)	Q_R (kW)
Calcul	0,15	0.01	0,55	0,171	1 000	0,6	48,23	5,776
cone refroidi	0,15							5,646
cone non refroidi	0,15							5,469

La température T_b (1000 K) utilisée dans le calcul de Q_R est la moyenne arithmétique de la température d'une particule à la sortie du jet T_{pjH} et de sa température une fois retombée dans le lit T_b après un temps de séjour τ_f dans la fontaine.

$$T_{pf} = \frac{T_{pjH} + T_b}{2} \quad (3.49)$$

En considérant que la particule perd de l'énergie dans la fontaine vers les parois du réacteur à la température T_a , l'équation suivante permet de calculer T_{pjH}

$$\frac{T_{pjH} - T_a}{T_b - T_a} = \exp\left(-\frac{h_r \delta_p}{m_p C_{ps}} \tau_f\right) \quad (3.50)$$

T_b est prise égale à la température mesurée à la surface du lit.

Le tableau 3.6 résume le calcul des pertes dans la base du réacteur à l'aide des équations 3.23 à 3.25. Les valeurs de Q_C calculées sont comparées à celles mesurées.

TABEAU 3.6 RÉSUMÉ DE CALCUL DE Q_C AVEC LES VALEURS UTILISÉES ET COMPARAISON AVEC Q_C MESURÉS.

	H (m)	h_r (W/m ² K)	h_c (W/m ² K)	h_w (W/m ² K)	h_{global} (W/m ² K)	S_w (m ²)	T_b (K)	Q_{12} (kW)	Q_{23} (kW)	Q_C (kW)
Calcul	0,19	6	8	120	12,5	0.14	923	0,587	1,100	1,687
cône refroidi	0,19						873	0,587	1,655	2,242
cône non refroidi	0,19						923	0,587	1,286	1,872

Les valeurs mesurées pour Q_C et Q_R dans le cas du cône non refroidi sont très proches de celles calculées à partir des équations utilisées pour l'estimation des pertes, ce qui permet de conclure que le modèle global utilisé pour le calcul de la température moyenne du lit en tenant compte des pertes thermique est réaliste et peut être utilisé pour l'estimation de la température moyenne du lit lors des différentes conditions de fonctionnement.

Répartition des puissances

Le tableau 3.7 résume la répartition de la puissance utile véhiculée par le gaz à la sortie de la torche (P_{th}) après établissement du régime permanent au cours des deux bilans expérimentaux (cône refroidi et non refroidi).

TABEAU 3.7 RÉPARTITION DES PUISSANCES EN % DE P_{th} .

	Q_R/P_{th} (%)	Q_{12}/P_{th} (%)	Q_{23}/P_{th} (%)	$\Delta h_{gz}/P_{th}$ (%)	P_{Ri}/P_{th} (%)
cône refroidi	56	6	16	3	19
cône non refroidi	57	6	14	3	20

Les pertes les plus importantes sont dues au rayonnement des particules dans la fontaine (57%), alors que les pertes dans la base représentent 20% de l'énergie disponible dans le gaz. Ces pertes restent cependant sous-estimées car les pertes non comptabilisées représentent 20% de l'énergie totale. Cependant ces dernières incluent aussi la portion de puissance emmagasinée dans le solide et dans la carcasse du réacteur à cause que le régime permanent n'est pas tout à fait atteint alors que les calculs précédents supposent le régime permanent.

3.7 Mesures de température dans le lit

La température du solide a été mesurée dans les trois zones du lit: Partie supérieure (proche de la surface du lit), partie inférieure (bas du cône) et fontaine.

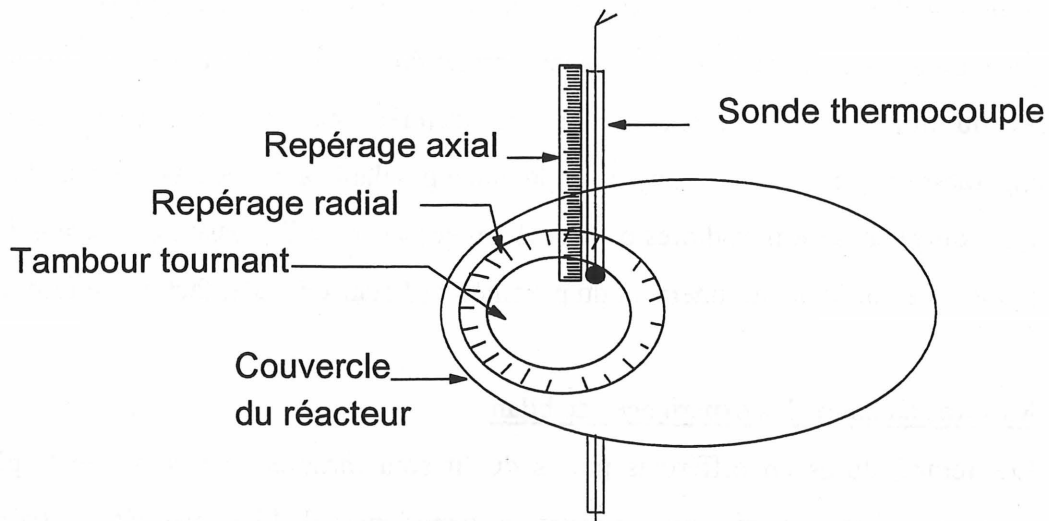
Température dans la partie basse du lit

Dans la partie basse du lit, des thermocouples type K de diamètre 6 mm sont insérés de manière radiale à travers la paroi du cône. La position de la pointe (point de mesure) est déterminée précisément et les positions de mesure sont fixes pour chaque expérience. Le nombre total de thermocouples insérés dans cette partie du lit ainsi que leur position varie selon le cône utilisé et l'expérience effectuée.

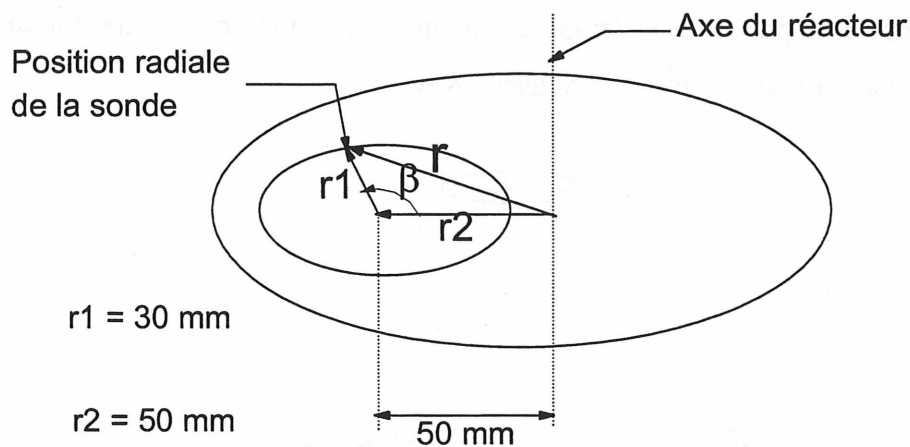
Température dans la zone supérieure du lit

La température dans la zone supérieure du lit est mesurée par une sonde constituée par un thermocouple inséré dans une gaine de céramique consolidée par un tube métallique. La sonde est solidaire d'un système de guidage axial et radial. Pour le positionnement radial, la sonde est solidaire d'un tambour tournant fixé sur le couvercle et dont l'axe est situé à 50 mm de l'axe du réacteur. Pour le positionnement axial, la sonde peut coulisser à travers un trou percé à la périphérie du tambour. Le positionnement de la sonde est manuel. Le système de positionnement est schématisé en figure 3.28a alors que le principe de détermination de la position radiale est détaillé en figure 3.28b. Pour la détermination de la position radiale, l'angle β est mesuré et pour le repérage de la position axiale, la longueur de la partie immergée de la sonde est mesurée. À cause des différents encombrements, de la longueur limitée de la sonde ainsi que pour la protection du thermocouple, la zone de lit sondable est limitée par:

$$r \geq 20 \text{ mm et } z \geq 138 \text{ mm}$$



(a)



(b)

Figure 3.28 a: Système de positionnement et de repérage de la sonde.

b: détermination de la position radiale $r = \sqrt{r_2^2 + r_1^2 - 2r_1r_2 \cos \beta}$

Température dans la fontaine

La température des particules dans la fontaine est mesurée grâce à un pyromètre installé sur le couvercle du réacteur. Le pyromètre voit la fontaine à travers une fenêtre de quartz aménagée sur le couvercle. Au préalable, le pyromètre a été étalonné grâce à un four à

température réglable. L'alumine est placée dans un mini lit soufflé à l'intérieur du four. Les conditions similaires à celles du réacteur sont réalisés dans le four. Le pyromètre est focalisé sur la fontaine du mini lit jaillissant dans le four et les lectures sont corrigées et corrélées en fonction de la température réglée dans le four. Cet étalonnage préalable a été nécessaire afin de palier aux erreurs qui pourraient être introduites par la méconnaissance de l'émissivité de l'alumine dans la fontaine ainsi que par le positionnement du pyromètre (distance focale, facteur de forme).

3.7.1 Mesures au cours des expériences de bilan

Les températures en différents points du lit sont mesurées au cours de la plupart des expériences effectuées. Les mesures au cours des expériences de bilan énergétique (cône refroidi et cône non refroidi) décrites ci-avant sont présentées ci-après.

Les positions des points de mesure dans le lit sont indiquées dans la figure 3.29 alors que les coordonnées des points et les températures mesurées en régime permanent au cours des deux expériences sont rapportées dans les tableau 3.8 et 3.9.

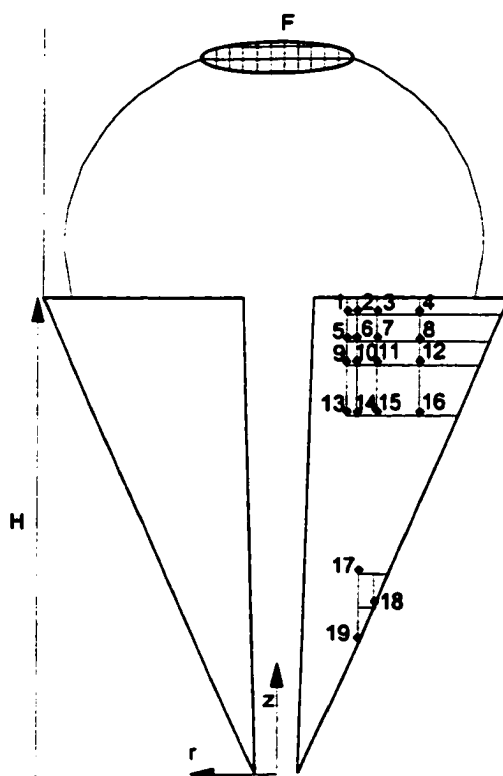


Figure 3.29 Positions de mesure de la température dans le lit

Cône non refroidi

La figure 3.30 représente les mesures de la température dans la zone supérieure du lit, en temps réel, au cours de l'expérience de bilan avec le cône non refroidi. Les mesures sont faites après chargement total du solide et établissement du régime permanent. Les positions de la sonde sont indiquées et les valeurs reportées dans la figure représentent la valeur moyenne pour chaque position.

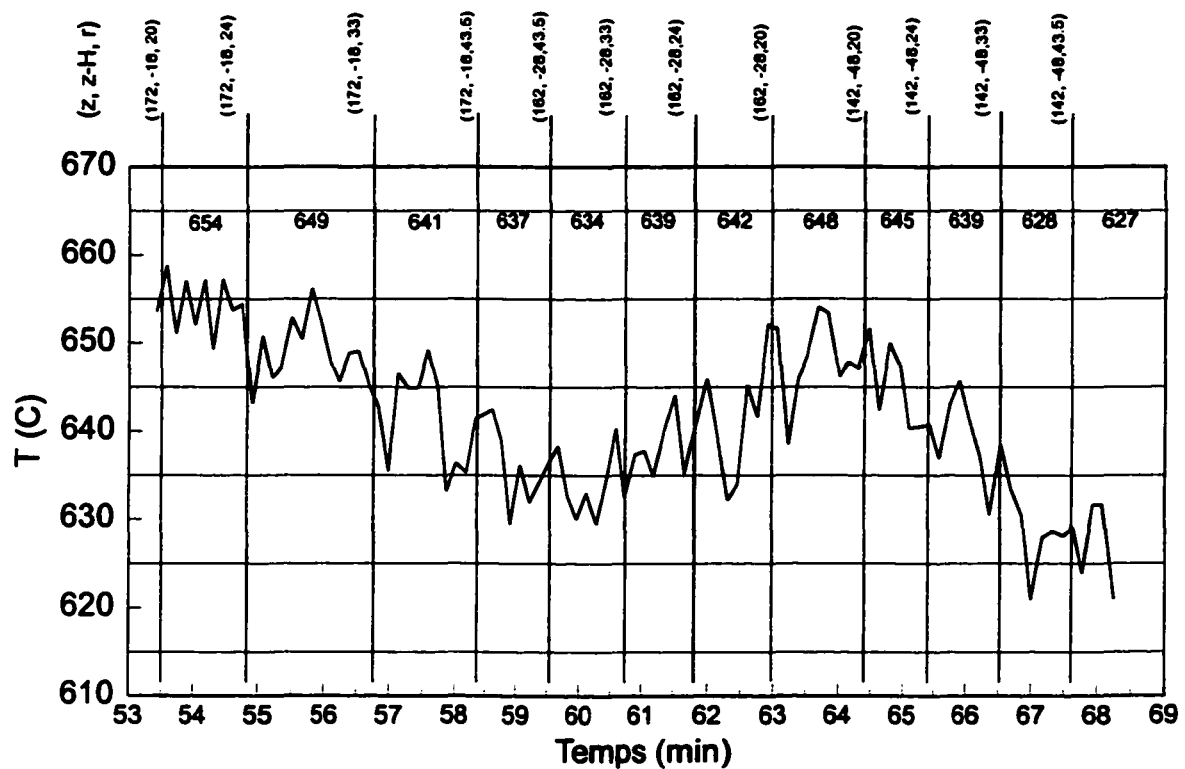


Figure 3.30 Température mesurée par la sonde en différentes positions du lit au cours de l'expérience de bilan avec cône non refroidi

Dans le tableau 3.8 sont rapportées les positions de mesure ainsi que les températures relevées aussi bien dans la partie supérieure que dans la partie inférieure du lit. La température des particules dans la fontaine mesurée par le pyromètre est aussi indiquée.

TABEAU 3.8 POSITIONS DE MESURE ET TEMPÉRATURES MESURÉES EN RÉGIME PERMANENT AU COURS DE L'EXPÉRIENCE DE BILAN AVEC CÔNE NON REFROIDI.

No Position (Ref. figure 3.29)	(z, z-H, r) (mm)	T (°C)
1	(182.5,-7.5,20)	--
2	(182.5,-7.5,24)	--
3	(182.5,-7.5,33)	--
4	(182.5,-7.5,43.5)	--
5	(172,-18,20)	654
6	(172,-18,24)	649
7	(172,-18,33)	641
8	(172,-18,43.5)	637
9	(162,-28,20)	648
10	(162,-28,24)	642
11	(162,-28,33)	639
12	(162,-28,43.5)	634
13	(142,-48,20)	645
14	142,-48,24)	639
15	(142,-48,33)	628
16	(142,-48,43.5)	627
17	(80,-110,25)	450
18	(65,-125,28)	275
19	(50,-140,25)	275
F	Sommet de la fontaine	677

Cône refroidi

La figure 3.31 représente les mesures en temps réel au cours de l'expérience de bilan avec le cône refroidi. Les positions de la sonde sont indiquées et les valeurs reportées dans la figure représentent la valeur moyenne pour chaque position.

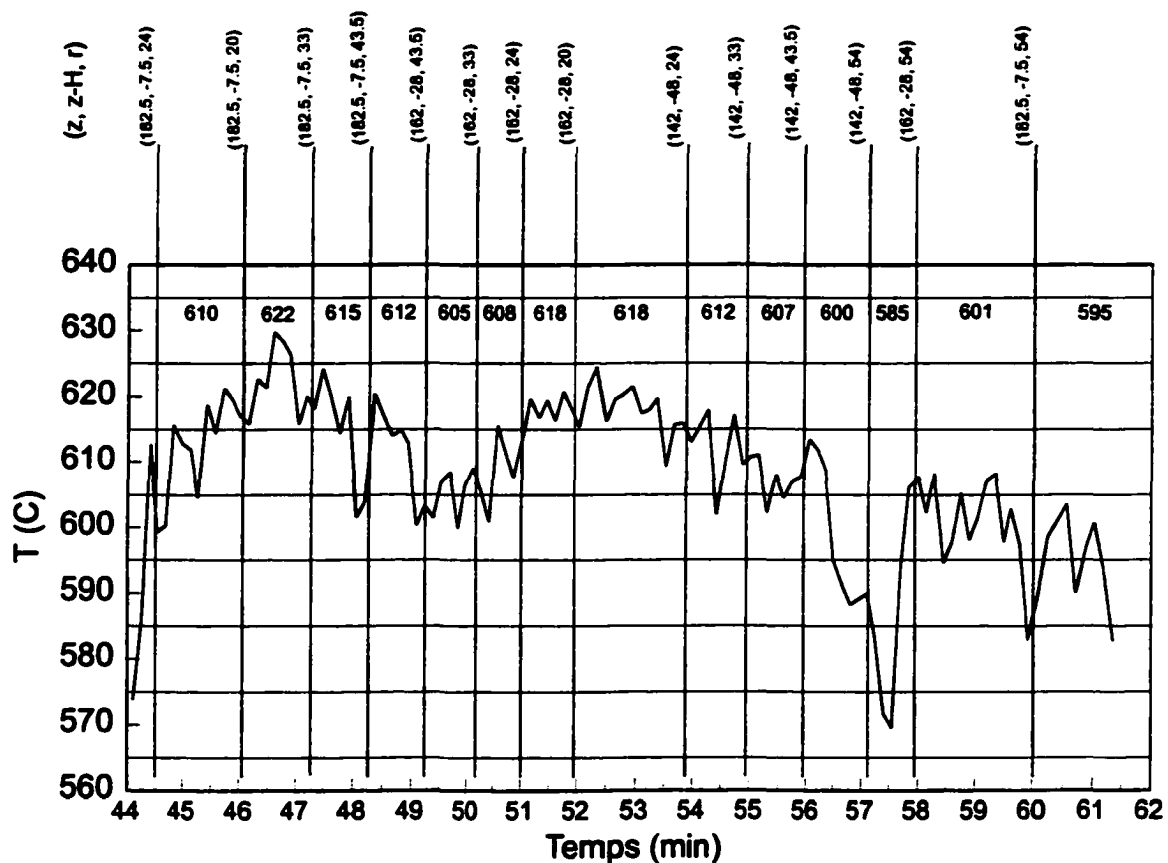


Figure 3.31 Température mesurée par la sonde en différentes positions du lit au cours de l'expérience de bilan avec cône refroidi

Dans le tableau 3.9 ci-dessous sont rapportées les positions dans le lit et les températures mesurées au cours de cette expérience.

TABEAU 3.9 POSITIONS DE MESURE ET TEMPÉRATURES MESURÉES EN RÉGIME PERMANENT AU COURS DE L'EXPÉRIENCE DE BILAN AVEC CÔNE REFROIDI.

No Position (Ref. figure 3.29)	(z, z-H, r) (mm)	T (°C)
1	(182.5,-7.5,20)	622
2	(182.5,-7.5,24)	610
3	(182.5,-7.5,33)	615
4	(182.5,-7.5,43.5)	612
5	(172,-18,20)	--
6	(172,-18,24)	--
7	(172,-18,33)	--
8	(172,-18,43.5)	--
9	(162,-28,20)	618
10	(162,-28,24)	618
11	(162,-28,33)	608
12	(162,-28,43.5)	605
13	(142,-48,20)	--
14	(142,-48,24)	612
15	(142,-48,33)	607
16	(142,-48,43.5)	600
17	(80,-110,25)	--
18	(65,-125,28)	--
19	(50,-140,25)	--
F	Sommet de la fontaine	--

Les températures dans la zone inférieure du lit ainsi que dans la fontaine n'ont pas été mesurées au cours de cette expérience.

3.7.2 Mesure des profils de température dans le lit

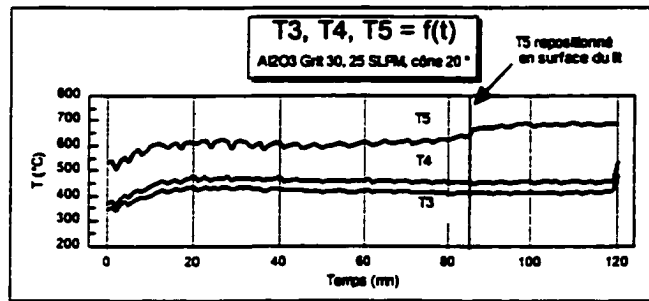
Les profils de température dans le lit ont été mesurés au cours de plusieurs expériences à l'aide de 5 thermocouples insérés radialement à différentes hauteurs dans la partie conique et d'un thermocouple inséré verticalement à partir du couvercle. Ce dernier permet de mesurer la température à la surface du lit. Les températures mesurées en différentes positions dans le lit sont présentées ci après pour la poudre Al_2O_3 Grit 30 ($d_p = 0.7$ mm) pour un débit de gaz Ar/N_2 (20 % N_2) de 25 SLPM et une puissance d'alimentation de l'ordre de 16 kW. Les conditions expérimentales pour chacune des expériences ainsi que les positions exactes des thermocouples et

les températures atteintes en régime permanent sont résumées dans le tableau 3.10. Les figures 3.32 a, b, c, et d illustrent les mesures de température au cours du temps durant ces expériences.

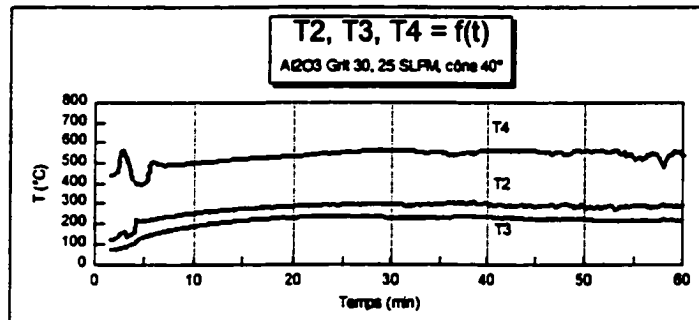
.

TABLEAU 3.10 CONDITIONS OPÉRATOIRES, TEMPÉRATURES ET EMPLACEMENT DES DIFFÉRENTS THERMOCOUPLES AU COURS DES EXPÉRIENCES OÙ LES PROFILS DE TEMPÉRATURE DANS LE LIT ONT ÉTÉ MESURÉS AVEC Al_2O_3 Grit30, DÉBIT DE GAZ Ar/N_2 (20%) 25 SLPM ET DIFFÉRENTS ANGLES DU CÔNE

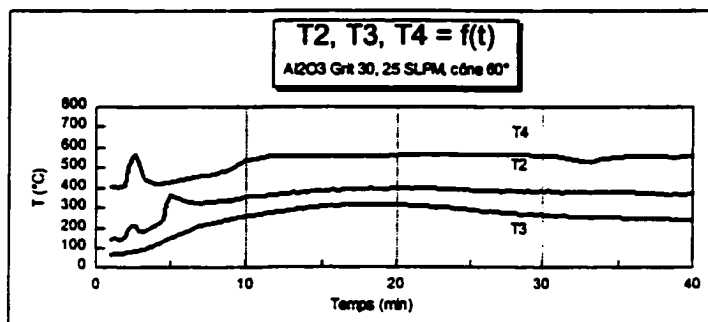
Expérience	charge (g)	hauteur du lit H (mm)	Puissance (kW)	Températures dans le lit : position (r,R-r,z,z-H) en mm et valeurs mesurées (°C)				
				T1 (r, R-r, z, z-H) mesure	T2 (r, R-r, z, z-H) mesure	T3 (r, R-r, z, z-H) mesure	T4 (r, R-r, z, z-H) mesure	T5 mesure
cône 20	3 160	327	15.5	--	--	(15,1.5, 65, -262) 422	(15,4.1, 80, -247) 465	(surface du lit) 694
cône 40	3 348	217	16	--	(15, 8, 50,-167) 283	(25,3.7,65, -152) 226	(25,9.1, 80, -137) 567	--
cône 60	3 900	190	16	--	(25, 9,50, -140) 387	(40,2.5,65, -125) 270	(25,26.2, 80, -110) 565	--
cône 60 base non conique	2 000	125	15	(14, 10, 6, -119) 55	(36, 8, 50, -75) 246	(50,2, 65, -60) 135	(38,23,80, -45) 444	(surface du lit) 653



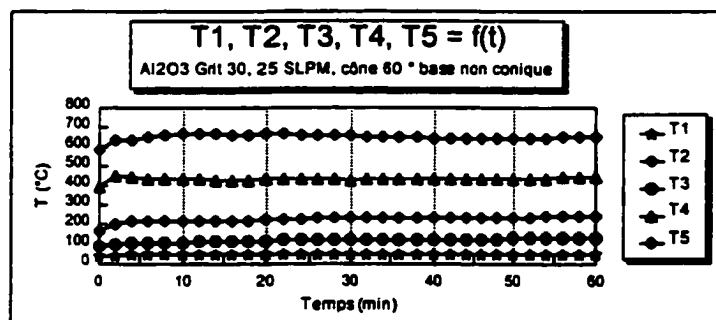
(a)



(b)



(c)



(d)

Figure 3.32 Profils de température dans le lit: (a) cône 20°, (b) cône 40°, (c) cône 60°, (d) cône 60° à base non conique. Les détails des conditions opératoires et les coordonnées des points de mesure des différentes températures sont donnés au tableau 3.10.

3.8 Interprétations et conclusions

Les mesures de température dans le lit montrent qu'en général la température dans le lit n'est pas uniforme. La température en un point dépend de sa position verticale et radiale, elle dépend en outre de sa distance verticale par rapport à la surface du lit et de sa distance radiale par rapport à la paroi du réacteur. La température du lit augmente du bas vers le haut avec un maximum à la surface et de la paroi vers le centre.

Le mouvement particulaire dans la zone annulaire de la périphérie vers le centre et du haut vers le bas contribue à l'existence de gradients de température. Cependant en régime permanent ces gradients ne devraient pas exister dans un réacteur adiabatique. Les pertes vers les parois du réacteur qui ne peuvent être complètement éliminées conjuguées au mouvement particulaire sont responsables des gradients de température observés.

Seul un modèle dynamique fin qui tient compte du mouvement particulaire couplé au transfert de chaleur permettrait d'expliquer ces gradients. Si on se fie au modèle dynamique bidimensionnel établi par Krzywanski et Epstein [KRZYWANSKI et Coll., 1992] qui permet de calculer le champs de vitesse des particules dans le lit (Figure 3.33), on peut expliquer qualitativement l'existence de ces gradients.

Le temps de résidence des particules dans la zone annulaire est qualitativement plus important pour les particules retrouvées dans la zone inférieure du lit. De plus, la zone annulaire du lit soufflé est plus compactée à la base (zone inférieure) qu'au voisinage de la surface (zone supérieure) à cause de la percolation progressive du gaz du jet vers la zone annulaire. Il est donc normal que la conductivité apparente du lit soit plus importante dans la zone supérieure du lit que dans la partie basse du lit. Les mesures faites dans la partie basse et dans la partie supérieure du lit sont concordantes avec cette analyse.

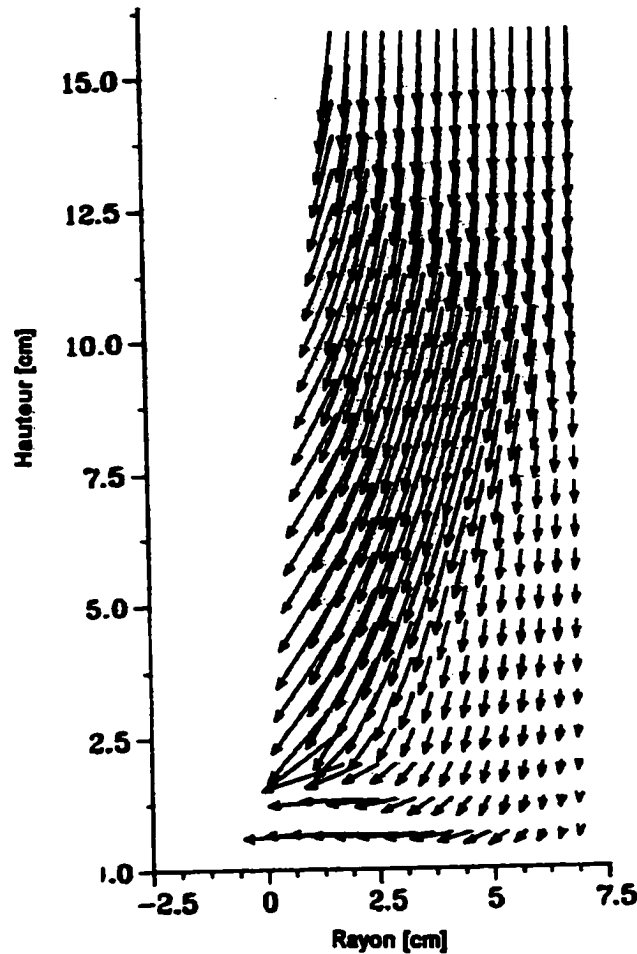


Figure 3.33 Champs de vitesse des particules dans le lit soufflé d'après [KRZYWANSKI et Coll., 1992]

Gradients dans la partie supérieure du lit

Les mesures de température faites dans la partie supérieure du lit dans le cadre de l'expérience de bilan avec cône non refroidi montrent (voire tableau 3.8) que les gradients de température axial et radial sont respectivement de 14 et de 7 K/cm. Cette partie du lit (environ le quart supérieur du lit) est quasi homogène en température. Il faut noter cependant que toutes les mesures dans cette zone ont été effectuées à une distance à la paroi $d = (R-r) \geq 13$ mm et à une distance par rapport au centre du jet $r \geq 20$ mm. Un gradient thermique important devrait exister dans la zone proche de l'interface zone du jet - zone annulaire et dans la zone proche de la paroi.

Ceci a été observé même dans le cas de lit soufflé à basse température (figure 3.34) [MALEK et Coll., 1964].

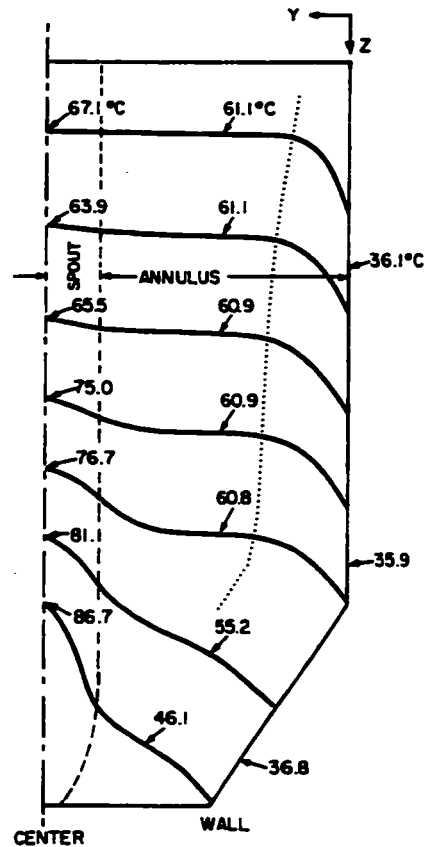


Figure 3.34 Gradients de température dans le lit soufflé d'après [MALEK et Coll., 1964]

Gradients dans la partie basse du lit

Les mesures de température dans la partie basse du lit rapportées dans le tableau 3.10 pour les différentes configurations de la base montrent qu'il existe des gradients importants dans cette zone du lit. Les gradients radiaux et axiaux calculés à partir des mesures effectuées dans cette zone sont compris entre 57 et 284 K/cm.

Si on suppose le transfert de chaleur du jet de plasma vers la zone annulaire équivalent à un transfert conductif monodimensionnel radial avec une conductivité thermique équivalente k_{eq} , on peut calculer cette conductivité pour différents gradients, connaissant la puissance totale véhiculée transmise par le jet de plasma à travers le lit, Q :

$$Q = \dot{m}_g C_{p_g}(T_{gi} - T_{ge}) = \frac{k_{er} 2\pi H \Delta r \left(\frac{\Delta T}{\Delta r}\right)}{\ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)} \quad (3.51)$$

r_2 et r_1 étant les positions radiales où T est mesurée et $\frac{\Delta T}{\Delta r}$ le gradient mesuré. Ce principe appliqué dans les conditions expérimentales utilisées lors du bilan thermique avec cône non refroidi, permet de voir les limites de variation de la conductivité thermique équivalente dans le lit. Les résultats sont résumés dans le tableau 3.11.

TABLEAU 3.11 ESTIMATION DE LA CONDUCTIVITÉ THERMIQUE ÉQUIVALENTE RADIALE DU LIT À PARTIR DE L'ÉQUATION 3.51 ET DES GRADIENTS MESURÉS DANS LE LIT.

\dot{Q}_g (SLPM)	\dot{m}_g (kg/s)	C_{p_g} (J/kg.K)	T_{gi} (K)	T_{ge} (K)	H (m)	Q (W)
25	$6.4 \cdot 10^{-4}$	978	9 688	923	0.19	5 469
$\frac{dT}{dr}$ (K/cm)	k_{er} (W/m.K)					
4	379					
8	190					
57	41					
284	8					

Les valeurs de la conductivité thermique équivalente ainsi déterminées sont dans la gamme des valeurs trouvées par Flamant [FLAMANT, 1990a] qui a identifié une conductivité radiale de 7 W/m.K et une conductivité axiale de 1200 W/m.K à partir de mesures faites dans le lit et de la résolution de l'équation de chaleur bidimensionnelle dans la zone annulaire.

Température moyenne du lit

L'hypothèse d'un lit à température uniforme utilisée pour l'établissement du modèle global pour l'estimation de la température moyenne du lit, n'est valide que pour la tranche supérieure du lit où les gradients sont faibles. Cependant ce modèle reste un outil utile pour l'estimation de la température moyenne du lit réalisable sous différentes conditions de fonctionnement. À partir des mesures faites dans le lit dans le cas de l'expérience avec cône non refroidi (Tableau 3.8), la température algébrique moyenne calculée à partir de tous les points de mesure est de 572 °C alors que le modèle prévoit une température moyenne dans les mêmes

conditions de 627 °C. Ce qui est une bonne prédiction vu que la température moyenne du lit reste difficile à calculer à partir de mesures faites dans un lit non isotherme.

Pertes thermiques

Les pertes thermiques importantes dans les conditions opératoires du réacteur utilisé sont responsables du faible niveau de température atteint dans le lit en comparaison avec le niveau de température réalisable dans le cas adiabatique. Les pertes dans la partie conique occupée par le lit contribuent à l'existence de gradients importants dans cette zone. Les pertes radiatives dans la fontaine calculées à partir des bilans thermiques réalisés sont importantes et représentent environ 60% de l'énergie totale disponible dans le jet à la sortie de l'anode. Bien que la température mesurée dans la fontaine (677°C) ne soit pas très élevée, l'énergie rayonnée reste très importante à cause de la surface totale des particules présentes dans la fontaine à tout instant ($S_{pr} \approx 0.1 \text{ m}^2$).

Pour des opérations où une température élevée est souhaitable, il est important de diminuer les pertes radiatives. Ceci peut être réalisé par un choix adéquat des surfaces internes du réacteur (émissivité faible) et par une isolation adéquate afin de maintenir la température des parois internes du réacteur à une température élevée.

CHAPITRE 4

4. ATTRITION ET ÉLUTRIATION

4.1 Introduction

L'attrition est le phénomène de dégradation du matériel granuleux lors de sa manipulation dans les opérations de transport ou de stockage et lors de son traitement dans les différentes industries: chimiques, agro-alimentaires et autres. La dégradation concerne la taille et la forme des particules et peut causer deux problèmes majeurs:

- le changement des propriétés physiques du matériel telles que la distribution de taille des particules, leur forme, la surface spécifique et la densité apparente du matériel agit directement sur sa facilité d'écoulement causant des difficultés dans les opérations de transport et de traitement ultérieures ;
- la génération de particules fines et poussières peut causer des pertes notables de matériel de valeur et conduit aussi à des investissements dans les mesures de contrôle pour prévenir des dommages à la santé des individus et à l'environnement en général.

L'élutriation est un phénomène qui s'associe souvent à l'attrition. Il s'agit du phénomène d'entraînement des particules fines par les gaz hors de l'enceinte (réacteur). Ces mêmes particules fines ayant été produites au préalable par l'attrition de particules plus grosses.

Malgré le fait que l'attrition est souvent vue comme une nuisance, elle peut être bénéfique dans certain cas de traitement du matériel granuleux. C'est le cas notamment lors des réactions solide/gaz où des couches de produit de réaction imperméables au gaz enrobent la particule et empêchent le contact solide/gaz nécessaire à la poursuite de la réaction. Dans ce cas l'attrition permet par défrichement de la surface de la particule d'exposer continuellement une surface fraîche au gaz réactif. La production de l'acide phosphorique à partir du phosphate de calcium et de l'acide sulfurique en est un bon exemple.

Dans les études sur la dégradation du matériel granuleux, certains auteurs font la différence entre la dégradation par abrasion (phénomène de surface) et la dégradation par fragmentation. Le terme attrition désignant surtout le premier processus de dégradation. Néanmoins, dans un procédé réel les deux phénomènes sont liés.

4.2 Les mécanismes et les paramètres influents

La dégradation de taille des particules est souvent le résultat de mouvements entre les particules et les parois d'un conteneur ou d'autres particules. Ce mouvement relatif peut être causé par l'écoulement d'un fluide, la gravité ou la vibration mécanique. Les forces impliquées dans le processus de fracture peuvent être générées par des chocs à haute vitesse ou alternativement être transmises à travers la matrice de particules avoisinantes. En général, les collisions particules - parois ont lieu à des vitesses plus importantes que les collisions particule - particule. Les exceptions importantes se produisent :

- dans la zone de jet près de la grille du lit fluidisé et dans la zone du jet du lit soufflé où les particules peuvent atteindre des vitesses élevées;
- lors de chutes de particules qui viennent heurter violemment le lit de particules stationnaires en dessous notamment au cours du processus de chargement du réacteur à partir d'un alimenteur situé en haut.

On peut distinguer entre plusieurs mécanismes qui produisent des effets différents:

- les chocs à faible vitesse arrachent des petits fragments dans les extrémités des particules ;
- les chocs à grande vitesse disloquent la particule en fragments larges ;
- la friction entre particules dans le lit abrase leurs surfaces et produit des particules très fines.

Les chocs (particule - particule ou particule - paroi) ainsi que la friction entre particules ne sont pas les seules causes de dégradation de la taille des particules. D'autres paramètres tels que la pression, les chocs thermiques et la réaction chimique causent aussi le même effet. En plus de tous ces paramètres, l'étendue de l'attrition dépend aussi du temps qu'un matériel donné passe dans un environnement où il subit une dégradation de taille. L'influence de tous ces paramètres est discutée ci-après.

4.2.1 Les propriétés des particules

Les propriétés physiques des particules ont une grande influence sur leur prédisposition à la dégradation.

La forme d'une particule influence la distribution des contraintes à l'intérieur du solide et par conséquent la réponse de la particule à des forces externes. Les particules de formes irrégulières perdent leurs excroissances au cours des collisions et tendent à sphéroidiser tout en diminuant de taille au cours du temps. Les particules sphériques subissent moins d'abrasion de surface.

La taille individuelle des particules ainsi que la distribution de taille au sein d'un échantillon ont une influence sur l'attrition. En général, les particules fines subissent moins de fractures que celles plus grosses principalement parce les premières contiennent en général moins de défauts que les secondes. Cependant, il n'existe pas de relation systématique entre la taille, la distribution de taille et la friabilité [BMHB, 1987].

Les particules poreuses sont en général plus élastiques que celles de même taille mais non poreuses et sont de ce fait moins prédisposées à la fracture. Cependant les pores sont souvent remplis de fluide emprisonné dont le changement d'état ou de la pression causés par une variation de température peuvent augmenter la prédisposition des particules poreuses à la dislocation.

La dureté et la texture de surface des particules affectent leur résistance à l'usure et leur prédisposition à la fracture. Si la surface présente des aspérités, elles sont cassées au cours du processus d'abrasion et forment des fines. Les micro fissures présentes à la surface de la particule peuvent se propager sous l'action des contraintes extérieures et conduire finalement à la rupture de la particule.

4.2.2 Le temps

À l'échelle microscopique, la durée d'une collision influence l'étendue du dommage causé. En effet le taux de décélération au cours d'un choc est directement lié aux forces impliquées dans la collision.

À l'échelle macroscopique, la durée de l'attrition: temps passé par le matériel dans un environnement d'attrition détermine l'étendue de la dégradation. La relation entre le temps et l'attrition est généralement non linéaire. Le taux d'attrition diminue avec le temps et tend vers une constante [BMHB, 1987].

4.2.3 La vitesse

La vitesse relative des corps en collision a une influence importante sur la nature et l'étendue de l'attrition. En général, le taux d'attrition suit une loi de puissance de la vitesse des particules ou du fluide dans lequel elles sont en suspension [BMHB, 1987].

4.2.4 La pression

La pression absolue a un effet indirect sur l'attrition par influence sur certaines propriétés telles que la densité et la viscosité. Le changement de pression à l'intérieur de la particule peut avoir un effet direct en causant son explosion. Ce changement de pression est souvent dû au chauffage d'un quelconque fluide (gaz ou liquide) emprisonné à l'intérieur de la particule.

4.2.5 Le cisaillement

Le cisaillement est le mouvement d'une couche de particules par rapport à une autre ou par rapport à une autre surface solide (paroi du conteneur par exemple). La friction générée par le cisaillement est la cause majeure d'attrition dans les alimenteurs à vis et dans les colonnes à garnissage.

4.2.6 La température

La dureté et l'élasticité du matériel sont parmi les propriétés affectées par la température. Aux basses températures, les matériaux peuvent devenir fragiles et casser facilement alors qu'aux températures élevées ils peuvent ramollir, s'agglomérer ou même fondre et perdre leur propriétés particulières. Les gradients thermiques au sein d'un solide peuvent produire des contraintes conduisant à la rupture. Les particules solides hétérogènes composées de matériaux avec différents coefficients d'expansion thermique sont particulièrement sensibles aux effets de la température. Ainsi l'élévation rapide de la température d'une particule non homogène peut conduire à sa fragmentation ; ce phénomène est désigné par choc thermique.

4.2.7 La réaction chimique

Lorsqu'un matériel est impliqué dans une réaction chimique, la surface réagit en premier et génère à l'intérieur de la particule des contraintes pouvant conduire à sa fracture.

4.3 Évaluation de l'attrition

Durant l'attrition du matériel granuleux, plusieurs propriétés et paramètres changent. La mesure de ces changements permet d'évaluer l'étendue de l'attrition. Le choix des paramètres à mesurer dépend de la nature et de l'application du matériel.

Les paramètres mesurés sont liés aux propriétés des particules individuelles ou à celles du matériel granuleux en vrac. Les propriétés dont le changement peut être mesuré et utilisé pour évaluer l'attrition du matériel sont: la forme et la taille des particules. La mesure de la forme est souvent faite par analyse d'image qui permet de mesurer l'indice de sphéricité des particules. Ces mesures sont souvent fastidieuses et entachées d'arbitraire ce qui limite leur utilisation.

La mesure de la taille et de la distribution de taille des particules est la méthode la plus utilisée pour évaluer l'attrition du matériel. La distribution de taille est le plus souvent obtenue par tamisage. Il existe des standards à cet effet, on peut citer ISO 3310 (1975) par exemple. Pour les particules fines, d'autres techniques sont souvent utilisées: la mesure des aires projetées sous microscope optique ou électronique, la mesure du taux de sédimentation...Une revue détaillée des techniques de mesure de taille des particules est disponible dans [ALLEN, 1981].

Les propriétés du solide en vrac dépendent de la taille et de la forme des particules. Elles sont donc affectées par l'attrition et le suivi de leur évolution permet aussi d'évaluer l'étendue de l'attrition. Les paramètres les plus exploités à cet effet sont : la densité apparente et l'angle de friction interne du matériel.

4.3.1. Évaluation de la susceptibilité à l'attrition

Une grande variété de tests a été développée pour évaluer la friabilité des matériaux. Ces tests dont la plupart sont standardisés ont été développés en rapport avec le contexte d'utilisation du matériel. Ainsi les tests de compression et de cisaillement utilisés en mécanique des sols servent à mesurer la résistance des matériaux à l'attrition sous l'effet de compression ou de cisaillement. Les tests d'impact sont utilisés pour mesurer la résistance des particules à des chocs contre les parois. D'autres tests basés sur l'attrition du matériel entraîné dans un tambour tournant "tumbler test" ont été développés pour mesurer la friabilité des catalyseurs et des comprimés dans les industries pharmaceutique et chimique. Certains de ces tests sont utilisés dans le contrôle de

qualité. Une revue détaillée de tous ces tests est disponible dans la référence [BMHB, 1987]. Les indices de broyage: Indice de Hardgrove et indice de Bond, bien que développés dans les tests de broyage, sont aussi souvent utilisés pour comparer la friabilité des matériaux et leur résistance à l'attrition.

4.3.2 Taux d'attrition

Pour mesurer l'attrition, on s'intéresse souvent à la quantité de fines produits. Le terme fines reste à préciser. En général, on définit les fines comme les particules dont le diamètre est inférieur à une certaine valeur fixée. Cette valeur correspond souvent au diamètre des particules susceptibles d'être éluutriées. Alternativement, cette valeur est fixée arbitrairement et les fines représentent tout le matériel dont le diamètre est inférieur à cette valeur.

Le taux ou vitesse d'attrition représente la variation de la masse de fines formés par rapport au temps.

4.4 Attrition dans le réacteur à lit soufflé

Dans les procédés à lit soufflé ou fluidisé de manière générale, les particules doivent séjourner dans le réacteur pendant un certain temps. Toute attrition conduisant à la réduction de la taille du matériel granuleux durant cette période affecte les caractéristiques hydrodynamiques et conduit aussi à la formation de fines qui sont éluutriées hors du réacteur et sont perdues à moins qu'un recyclage soit prévu.

Plusieurs sources d'attrition peuvent être identifiées dans le cas du réacteur à lit soufflé typique (Figure 2.18 chapitre 2). Certaines ont une action continue comme la zone du jet alors que d'autres, comme l'explosion due à la pression interne des gaz dans les pores de la particule qui agit à un moment donné, sont considérées comme ponctuelles. Les différentes sources sont résumées dans le TABLEAU 4.1

Vue la variété de sources d'attrition existantes dans un procédé réel et le fait que ces sources impliquent des mécanismes différents, il est difficile de modéliser l'attrition dans un réacteur à lit soufflé. L'attrition importante en lit soufflé est sûrement l'une des causes qui a limité son développement comme réacteur catalytique [EPSTEIN et Coll., 1974]. Cependant le

phénomène d'attrition dans le lit soufflé peut être exploité avantageusement dans le cas de réaction solide/gaz non catalytiques et dans le cas de solides ayant tendance à l'agglomération.

TABLEAU 4.1 SOURCES ET CARACTÉRISTIQUES DE L'ATTRITION DANS LES LITS SOUFLÉS.

Source d'attrition	Type d'attrition	Dépendance par rapport au temps	Zone d'influence
Alimenteur à vis	Broyage mécanique et cisaillement	Ponctuelle durant la charge	Dans la zone d'action de la vis à l'intérieur de l'alimenteur
Chute: Sortie d'alimenteur - surface du lit	Chocs à faible vitesse contre le haut de l'anneau et contre les parois	Ponctuelle durant la charge	Parois du réacteur et surface du lit
Particules entraînées dans le cyclone	Chocs à vitesse élevée contre les parois	Ponctuelle continue s'il y a recyclage	Parois du cyclone
Particules entraînées dans le franc-bord	Chocs interparticulaires à faible vitesse et contre les parois	Ponctuelle continue s'il y a recyclage	Zone de franc-bord
Chocs thermiques	Contraintes induites par le chauffage	Ponctuelle, à la première rentrée dans le jet	Dans la zone du jet
Réaction chimique	Contraintes causées par le changement de structure	Continue	Dans le volume du lit
Mouvement dans l'anneau	Contraintes de cisaillement	Continue	Dans la zone de l'anneau
Mouvement dans le jet	Chocs à vitesse élevée entre particules et contre les parois du jet	continue	Dans la zone du jet
Chute fontaine - anneau	Chocs à faible vitesse contre le haut de l'anneau et contre les parois	continue	Zone entre le toit de la fontaine et le haut de l'anneau
Pression interne des gaz	Explosion	Ponctuelle	Volume du lit

4.5 Matériel et méthode

Pour évaluer l'attrition dans le lit soufflé par plasma quelques expériences ont été planifiées pour voir l'effet de certains paramètres sur l'étendue de l'attrition: diamètre des particules, puissance et durée de traitement dans le réacteur. Ces expériences ont été menées dans le réacteur avec colonne de quartz décrit au chapitre 2 (figure 2.6) et avec une base conique en graphite de 60°. La méthode utilisée est le tamisage de la charge du réacteur avant et après chaque expérience. La distribution de taille des particules, le diamètre moyen du solide et la quantité de fines produits sont ainsi déterminés. Dans certaines de ces expériences, on a aussi mesuré le facteur de forme des particules avant et après expérience.

Parmi les sources d'attrition citées dans le tableau 2.1, l'alimenteur à vis et la réaction chimique ne sont pas présents au cours des traitements effectués et donc ne contribuent pas à l'attrition.

4.5.1 Distribution de taille et diamètre moyen des particules

La distribution de taille des poudres est déterminée par tamisage. Le procédé de tamisage utilisé reste le même pour toutes les expériences. Le tamisage est fait mécaniquement dans un appareil conçu à cet effet. L'appareil peut accepter un maximum de six tamis, emboîtés en pile verticale et la poudre à tamiser est initialement contenue dans le tamis d'en haut alors que les fines sont recueillies à la base de la pile. La sélection des tamis dépend de la taille de la poudre. L'appareil est muni d'un moteur qui fait vibrer pour une période sélectionnée la pile de tamis. La durée de tamisage a été fixée à 30 min pour tous les essais. Toute la poudre issue du réacteur est tamisée avec une limite de contenance maximale du tamiseur de 2 kg. Pour les échantillons initiaux (avant traitement), une quantité de 2 kg de poudre est utilisée pour la détermination de la distribution de taille.

Pour déterminer la distribution de taille dans la fraction de fines de diamètre $\leq 100 \mu\text{m}$, un sédigraphe a été utilisé. Le fonctionnement de l'appareil est entièrement automatisé et délivre comme résultat d'analyse la distribution de taille sous forme de pourcentage cumulatif en fonction du diamètre de poudre.

La taille moyenne de l'échantillon tamisé est calculée selon la formule habituellement utilisée pour déterminer la taille moyenne à partir du tamisage [ALLEN, 1981]:

$$d_p = \sum \frac{100}{\left(\frac{x_i}{d_{pi}}\right)} \quad (4.1)$$

x_i est la fraction massique du matériel recueilli dans le tamis i et d_{pi} est le diamètre moyen algébrique des ouvertures des tamis i et $i+1$.

Pour les distributions de taille obtenues par sédigraphie sous forme de pourcentage cumulatif, la taille moyenne de l'échantillon est définie comme la taille correspondant au 50% (taille médiane).

4.5.2 Détermination du facteur de forme des grains

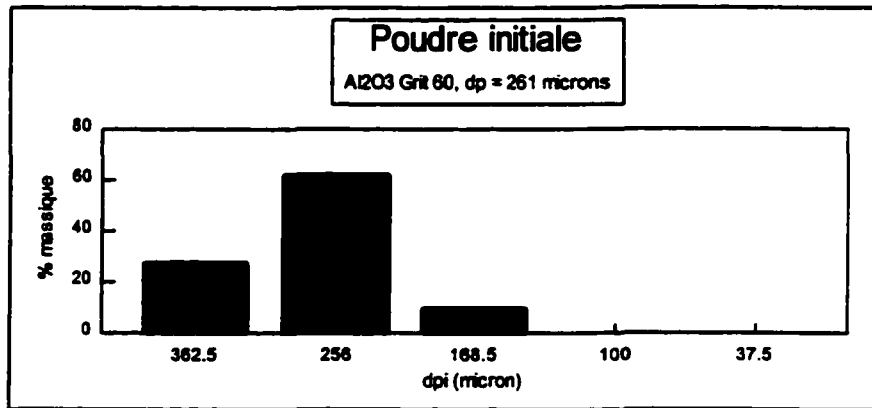
Pour déterminer la forme des grains, un microscope optique couplé à une caméra a été utilisé. L'analyse d'image est ensuite faite grâce à un logiciel de traitement d'image (*Mocha*). Le principe consiste à mesurer l'aire projetée pour une centaine de particules sélectionnées au hasard dans l'échantillon, le logiciel utilise ensuite une méthode basée sur la détermination du diamètre de Ferret pour calculer le facteur de sphéricité ψ pour chaque particule. Le facteur de sphéricité est compris entre 0 et 1 et il est défini par :

$$\psi = \frac{\text{aire d'une sphère de volume équivalent}}{\text{aire de la particule}} \quad (4.2)$$

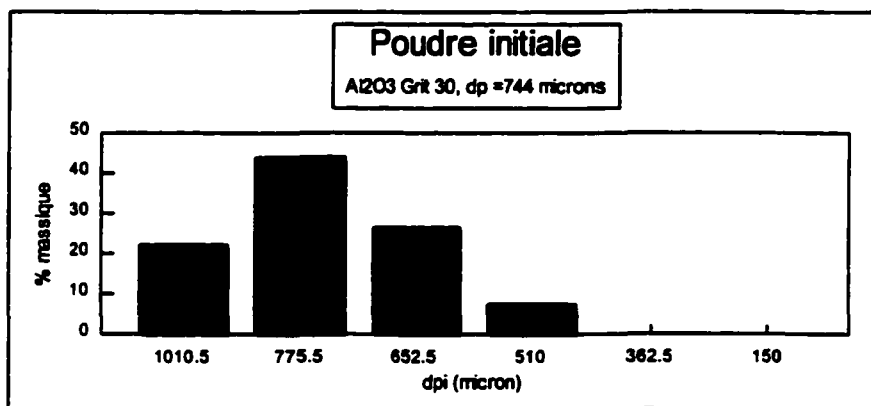
Le facteur de sphéricité de l'échantillon est pris égal à la moyenne déterminée sur les 100 particules sélectionnées au hasard. La méthode est ardue, et les mesures de facteur de sphéricité ont été faites pour un nombre limité d'essais.

4.5.3 Caractéristiques du matériel granuleux initial (avant traitement)

Le matériel initial utilisé pour la caractérisation de l'attrition dans le réacteur à lit soufflé par plasma DC est de l'alumine type α (corindon) avec deux granulométries désignées sous les noms commerciaux: Grit 60 et Grit 30. La distribution de taille de ces poudres, déterminée par tamisage, est présentée dans les figures 4.1 a et b.



(a)



(b)

Figure 4.1 Distribution de taille dans les poudres initiales. (a) Grit 60, (b) Grit 30.

La figure 4.2 montre une photo des particules catégorie Grit 60 faite à l'aide du microscope électronique à balayage (MEB). La forme des particules est très variable avec une structure caractéristique du corindon (angles vifs). Le facteur de sphéricité déterminé pour cette poudre est de 0.5. La figure 4.3 montre les détails de structure à la surface d'un grain. Cette photo montre l'existence de plusieurs fissures qui vont augmenter la susceptibilité de la poudre à l'attrition. La figure 4.4 montre une photo de coupe d'un grain. La photo est obtenue avec le MEB en mode radiodiffusé et permet de montrer, par contraste, l'existence d'inhomogénéités qui vont favoriser les dislocations par choc thermique. Les inhomogénéités sont causées par les impuretés (environ 2 %) principalement des oxydes de titane et de silicium d'après les analyses effectuées.

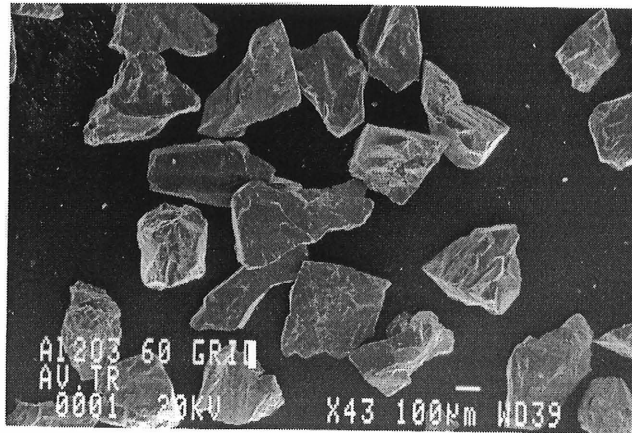


Figure 4.2 Photo de grains de Al_2O_3 Grit 60 obtenue à l'aide du microscope électronique à balayage (MEB).

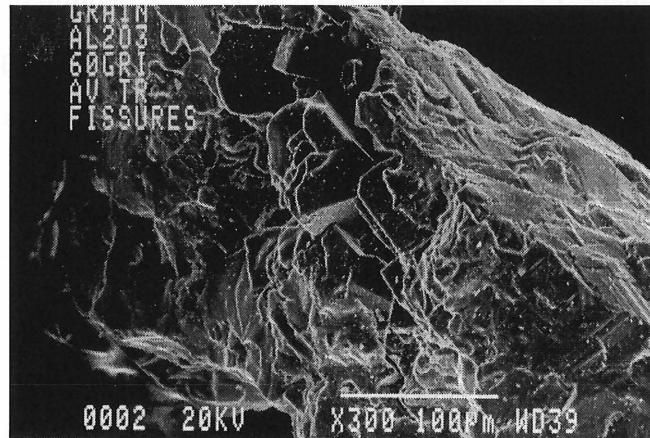


Figure 4.3 Photo montrant les détails de la surface d'un grain de Al_2O_3 Grit 60 avec présences de multiples fissures. Photo obtenue au MEB.

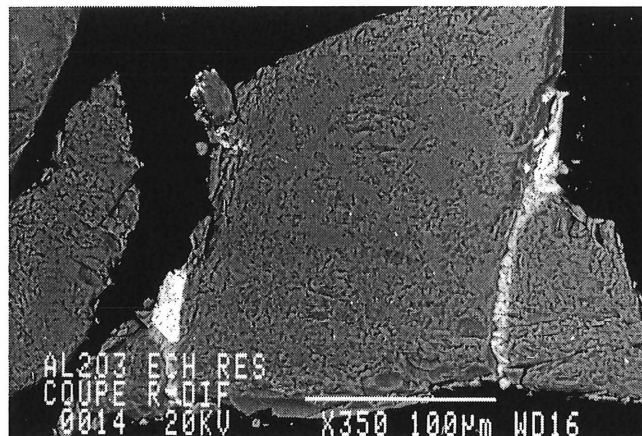


Figure 4.4 Photo de la coupe d'un grain de Al_2O_3 Grit 60 obtenue au MEB en mode rétro diffusé. Présence d'inhomogénéité dans le grain (en blanc).

4.6 Étude de l'attrition dans le réacteur à lit soufflé par plasma DC.

Pour les expériences planifiées pour l'étude de l'attrition, les deux catégories de poudre $\text{Al}_2\text{O}_3\alpha$ (corindon) sont utilisées: $\text{Al}_2\text{O}_3\alpha$ Grit 30 et $\text{Al}_2\text{O}_3\alpha$ Grit 60. Les expériences ont été menées dans le réacteur avec colonne en quartz à base conique en graphite de 60° décrit au chapitre 2. Au cours de ces expériences, la charge du réacteur a été fixée à 2 kg et la charge est faite manuellement (le temps de charge est d'environ 5 min). Le but de ces expériences est de déterminer l'effet de différents facteurs: puissance, durée de traitement et taille de particules sur l'attrition dans le réacteur à lit soufflé par plasma.

Dans le tableau 4.2 ci-dessous sont résumées les conditions opératoires et le bilan massique du solide pour ces expériences. La masse de solide éluée a été déduite de la masse recueillie dans le réacteur après traitement. En fait une partie de la poudre éluée se dépose dans la conduite qui relie la sortie des gaz en haut de la colonne et le cyclone. Cette poudre n'est pas systématiquement recueillie.

TABLEAU 4.2

RÉSUMÉ DES CONDITIONS OPÉRATOIRES ET DES RÉSULTATS AU COURS DES EXPÉRIENCES D'ÉTUDE DE L'ATTRITION.

Exp. N°	Catégorie de Poudre	Débit gaz (SLPM) et % N ₂	Puissance (kW)	T _{gi} (K)	V _i (m/s)	Masse chargée (g)	Durée (min)	Masse récupérée dans le réacteur (g)	Masse récupérée dans le collecteur (g)	Masse éluée (g)	% de charge éluée (%)
1	Grit 30	27 (26 % N ₂)	10	6 500	789	2 000	30	1 970	--	30	1.5
2	Grit 30	27 (26 % N ₂)	10	6 500	789	2 000	60	1 948	--	52	2.6
3	Grit 30	27 (26 % N ₂)	10	6 500	789	2 000	90	1 932	--	68	3.4
4	Grit 30	25 (50 % N ₂)	22	7 996	1 015	2 000	34	1 855	--	145	7.25
5	Grit 60	14.5 (40 % N ₂)	11.4	7 441	522	2 000	20	1 970	14.5	30	1.5
6	Grit 60	14.5 (26 % N ₂)	11.4	7 441	522	2 000	40	1 954	26.5	46	2.3
7	Grit 60	14.5 (26 % N ₂)	11.4	7 441	522	2 000	60	1 940	40	60	3
8	Grit 60	25 (50 % N ₂)	22.8	8 121	1 039	2 000	30	1 816	94.6	184	9.2

4.6.1 Effet de la durée de traitement

L'effet de la durée du traitement dans le réacteur est montré dans la figure 4.5 pour la catégorie de poudre Grit 30 et dans la figure 4.6 pour la catégorie de poudre Grit 60. Ces figures représentent le pourcentage de poids cumulé déduit du tamisage de la poudre récupérée dans le réacteur après chaque essai en fonction du diamètre. L'attrition augmente avec le temps de séjour des poudres dans le réacteur. L'effet est plus important pour les poudres de grosse taille (Al_2O_3 Grit 30).

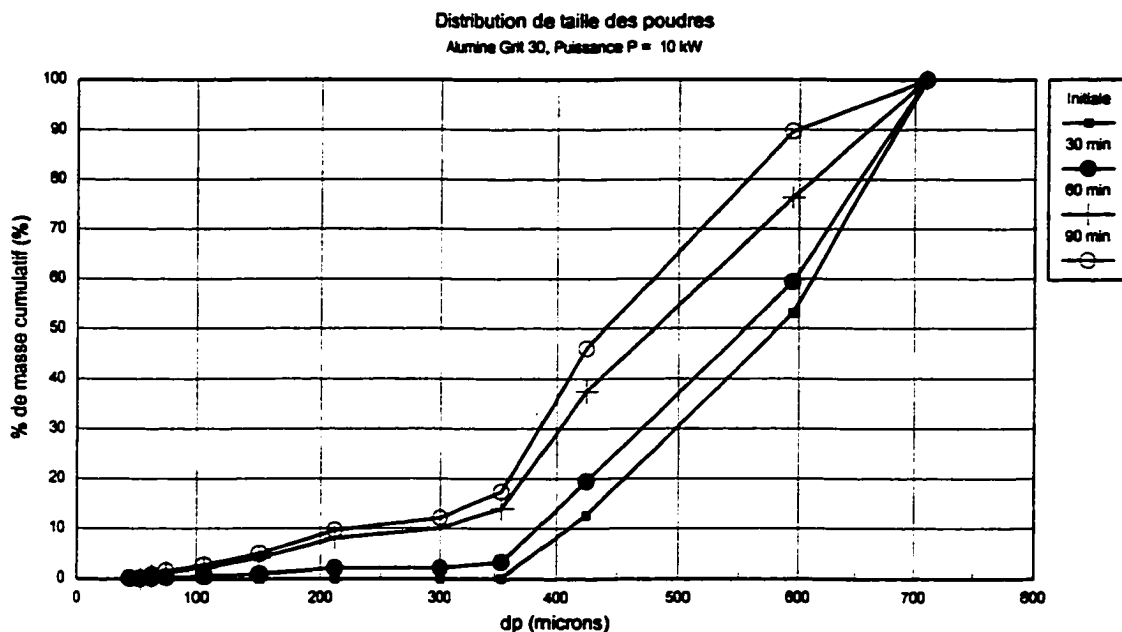


Figure 4.5 Effet de la durée de traitement sur la distribution de taille des poudres récupérées dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 30, expériences 1, 2, 3 tableau 4.2.

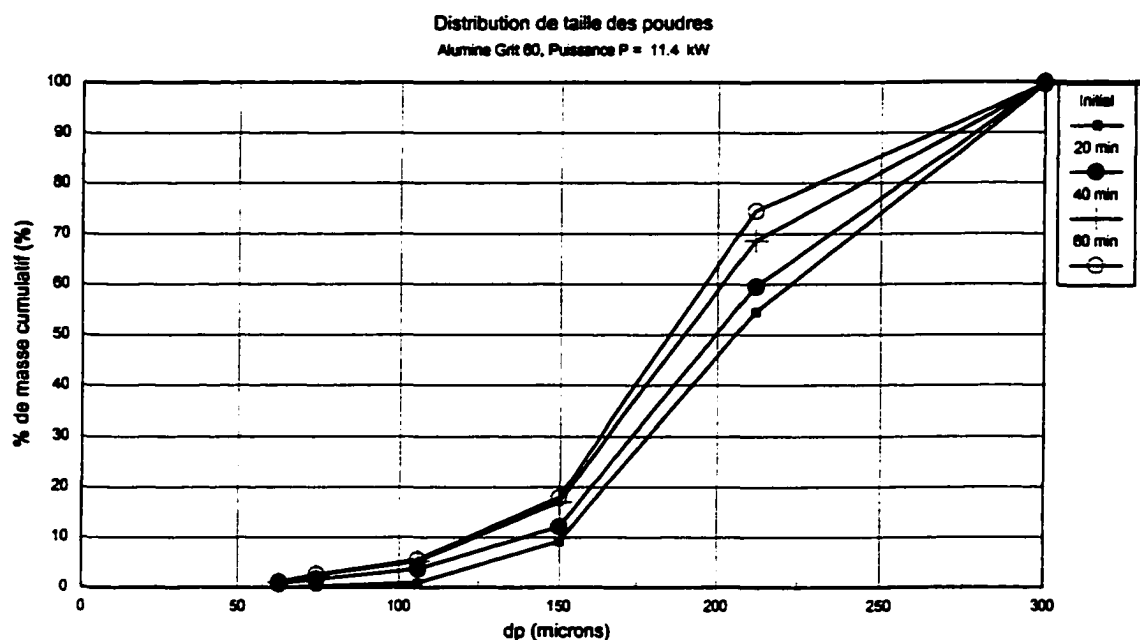


Figure 4.6 Effet de la durée de traitement sur la distribution de taille des poudres récupérées dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 60, expériences 5, 6, 7 tableau 4.2.

4.6.2 Effet de la puissance

L'effet de la puissance d'opération de la torche sur l'attrition des poudres est montré dans la figure 4.7 pour la catégorie Grit 30 et dans la figure 4.8 pour la catégorie Grit 60.

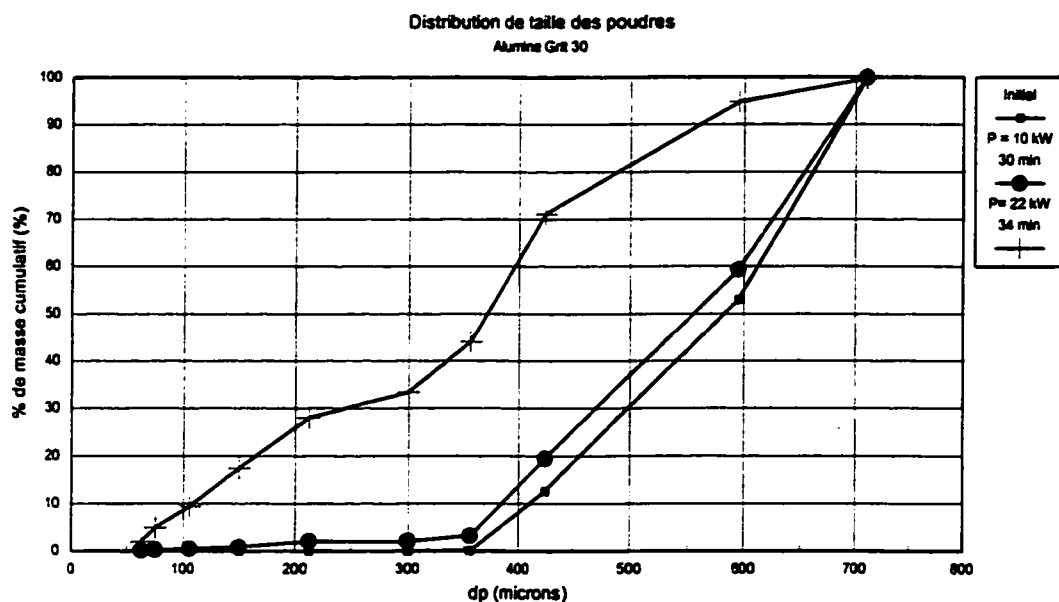


Figure 4.7 Effet de la puissance d'opération de la torche sur la distribution de taille des poudres récupérées dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 30, expériences 1 et 4, tableau 4.2.

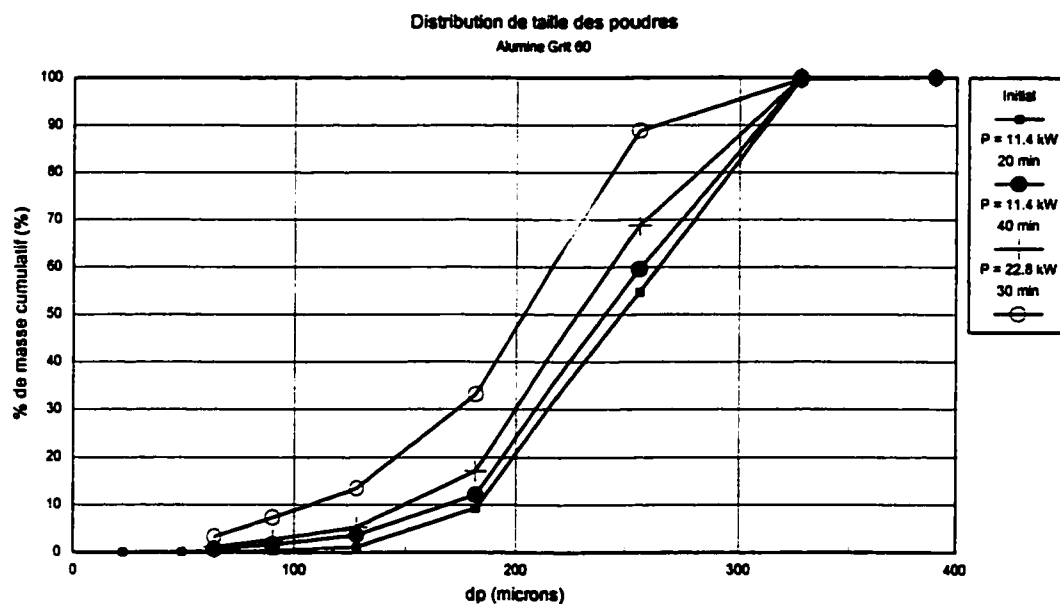


Figure 4.8 Effet de la puissance d'opération de la torche sur la distribution de taille des poudres récupérées dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 60, expériences 5, 6 et 8, tableau 4.2.

L'augmentation de la puissance d'opération de la torche, pour des durées de traitements similaires, augmente considérablement l'attrition des poudres dans le réacteur. Les figures 4.8 et 4.9 montrent que l'effet de la puissance est plus important pour les poudres de taille plus grosse Al_2O_3 Grit 30.

4.6.3 Taux de fines et évaluation de l'attrition

Le taux de fines a été défini comme le taux massique du matériel après traitement dont la taille est inférieure à la taille minimale retrouvée dans l'échantillon initial. Dans le cas de la catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 30, le tamisage de l'échantillon initial (figure 4.1 (b)) a permis de définir les fines comme étant le matériel de taille $< 300 \mu\text{m}$ et dans le cas de la catégorie de poudre Al_2O_3 Grit 60 (figure 4.1 (a)), les fines représentent le matériel de taille $< 75 \mu\text{m}$. La définition des fines adoptée ici permet d'évaluer l'attrition par le taux de matériel de faible taille non existant dans l'échantillon initial et donc entièrement produit par l'attrition. Le taux de fines produit incluant le matériel élué ainsi que la variation du diamètre moyen des poudres dans le réacteur, au cours des expériences décrites au tableau 4.2, sont rapportés dans le tableau 4.3.

Une vitesse moyenne d'attrition pour chaque expérience a été calculée et rapportée dans le même tableau. Elle est définie par:

$$\text{Vitesse d'attrition} = \frac{\text{Taux massique de fines produits (\%)}}{\text{durée (min)}} \quad (4.3)$$

Le tableau 4.3 montre que la diminution relative du diamètre moyen des poudres dans le réacteur ($\frac{\partial d_p}{d_p}$) augmente avec la durée de traitement. La même tendance est observée pour le taux de fines produits. Cependant, plus le temps de traitement augmente et plus l'attrition diminue. Ce fait est reflété par le taux d'attrition moyen calculé pour chaque expérience.

Les taux d'attrition varient dans une large gamme : 0.07 %/min à 0.97 %/min. Flamant [FLAMANT et Coll, 1990b] a déterminé un taux d'attrition de 10 %/min dans le cas de la décarbonation de la calcite dans un réacteur à plasma DC. Ce taux d'attrition est d'un ordre de

TABLEAU 4.3

VARIATION DU DIAMÈTRE MOYEN DES POUDRES DANS LE RÉACTEUR ET TAUX DE FINES PRODUITS AU COURS DES EXPÉRIENCES D'ÉTUDE DE L'ATTRITION.

Exp. N°	Catégorie de Poudre	Débit gaz (SLPM) et % N ₂	Puissance (kW)	Durée (min)	d _p initial (μm)	d _p final (μm)	$\frac{\partial d_p}{d_p}$ (%)	Taux massique de fines produit (%)	Taux moyen d'attrition (taux mass. fines en %/min)
1	Grit 30	27 (26 % N ₂)	10	30	744	637	14	4	0.13
2	Grit 30	27 (26 % N ₂)	10	60	744	498	33	11	0.18
3	Grit 30	27 (26 % N ₂)	10	90	744	461	38	13	0.14
4	Grit 30	25 (50 % N ₂)	22	34	744	304	59	33	0.98
5	Grit 60	14.5 (40 % N ₂)	11.4	20	261	250	4	2	0.11
6	Grit 60	14.5 (26 % N ₂)	11.4	40	261	233	11	3	0.09
7	Grit 60	14.5 (26 % N ₂)	11.4	60	261	229	12	4	0.07
8	Grit 60	25 (50 % N ₂)	22.8	30	261	185	29	12	0.4

grandeur supérieur au taux maximal mesuré au cours des expériences effectuées. Une telle différence est due au fait que la durée des expériences dans le cas de Flamant est faible (5 à 10 min) en plus de l'introduction d'une source d'attrition supplémentaire: la décarbonatation (réaction chimique). Il faut noter aussi que les matériaux utilisés dans les deux cas ne sont pas les mêmes et n'ont donc pas la même friabilité.

4.6.4 Effet de la taille des particules

Les résultats des différentes expériences montrent que l'attrition est plus importante pour les poudres de grosses taille. Les différents paramètres utilisés pour évaluer l'attrition: variation relative du diamètre moyen des poudres, taux de fines produits et taux moyen d'attrition montrent cet effet. Les particules de taille plus fine offrent plus de résistance à la fragmentation que les plus larges principalement parce que les particules fines contiennent moins de défauts et d'inhomogénéités. Cependant, la relation entre la taille des particules et la friabilité est complexe et dépend entre autre de l'environnement d'attrition [BMHB, 1987]. La diminution de l'attrition au cours du temps peut être expliquée par la diminution de la taille du solide. En général l'attrition est plus sévère au début de l'opération et diminue au fur et à mesure que la taille des particules diminue.

4.6.5 Variation de la forme des particules après traitement.

Le facteur de forme des particules a été mesuré au cours des expériences faites à haute puissance : expérience 4 pour Al_2O_3 Grit 30 et expérience 8 pour Al_2O_3 Grit 60. Pour la mesure de l'effet de l'attrition sur le facteur de forme des particules, une gamme de taille étroite de l'échantillon final et de l'échantillon initial a été ciblée. Ainsi pour la catégorie Grit 30, l'échantillon de 100 particules sur lequel la mesure de facteur de forme a été faite est extrait de la poudre retrouvée après tamisage entre les tamis d'ouvertures : 425 μm et 595 μm ($d_p = 510 \mu\text{m}$) et pour la catégorie Grit 60, l'échantillon est extrait de la poudre retrouvée entre les tamis d'ouverture: 212 μm et 300 μm ($d_p = 256 \mu\text{m}$). Les figures 4.9 et 4.10 montrent la distribution de la taille des particules après tamisage dans la poudre initiale et dans la poudre finale pour les expériences 4 et 8 (tableau 4.2).

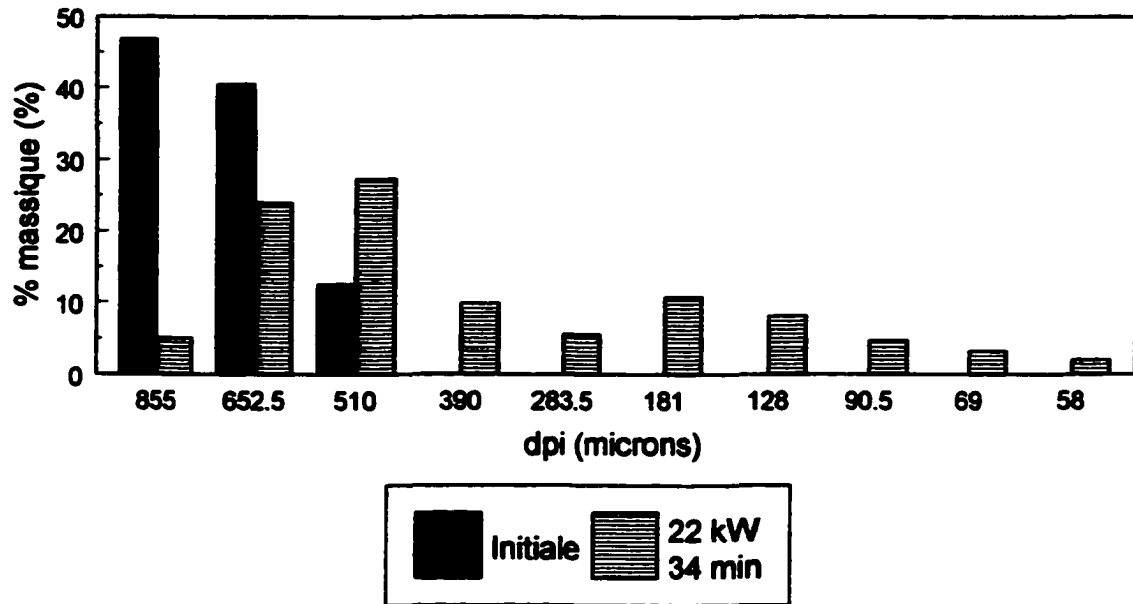


Figure 4.9 Distribution de taille des poudres avant et après traitement dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 30, initiale et après expérience 4 (tableau 4.2).

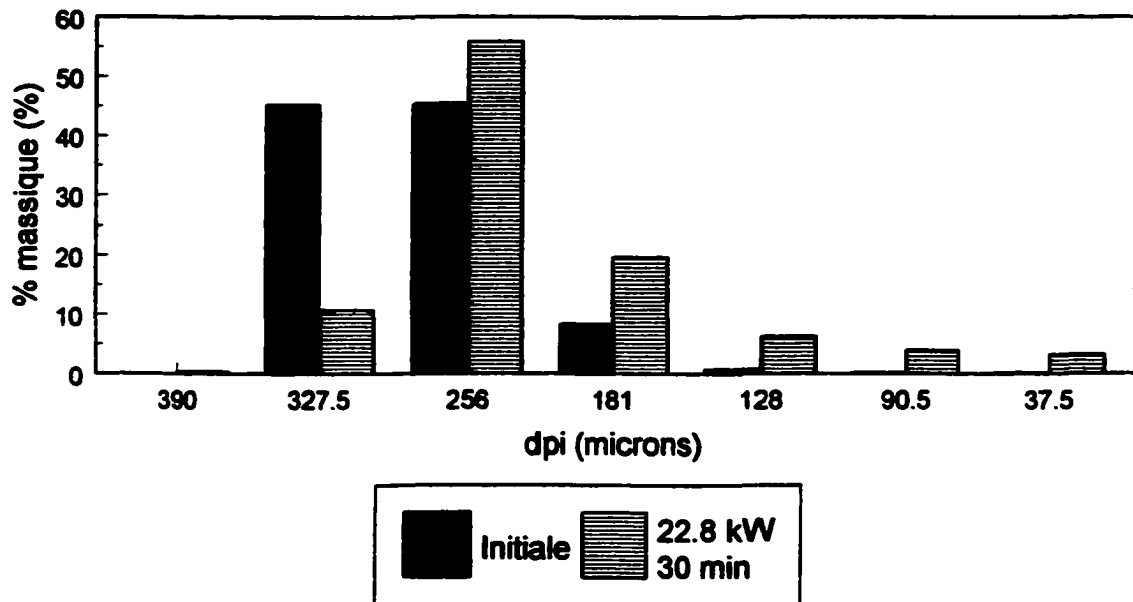


Figure 4.10 Distribution de taille des poudres avant et après traitement dans le réacteur. Al_2O_3 Grit 60, initiale et après expérience 8 (tableau 4.2).

Les résultats de mesure de facteur de forme sont rapportés dans le tableau 4.4 ci dessous.

TABEAU 4.4 CHANGEMENT DE FACTEUR DE FORME DE LA POUDRE DANS LE RÉACTEUR .

N° Expérience et conditions	Gamme de diamètre de poudre dans l'échantillon	ψ initial et déviation standard (σ)	ψ final et déviation standard (σ)	Variation relative de ψ $\frac{\partial\psi}{\psi}$ (%)
Exp.4 Al ₂ O ₃ Grit 30 P = 22 kW durée = 34 min	$425\mu m \leq d_{pi} \leq 595\mu m$ d_p moyen = 510 μm	$\psi = 0.57$ $\sigma = 0.09$	$\psi = 0.61$ $\sigma = 0.11$	$\frac{\partial\psi}{\psi} = 9.3$
Exp.8 Al ₂ O ₃ Grit 60 P = 22.8 kW durée = 30 min	$212\mu m \leq d_{pi} \leq 300\mu m$ d_p moyen = 256 μm	$\psi = 0.50$ $\sigma = 0.16$	$\psi = 0.67$ $\sigma = 0.07$	$\frac{\partial\psi}{\psi} = 34$

Les résultats de mesure de facteur de forme des particules dans les échantillons sélectionnés, montrent que le facteur de forme des particules augmente après le traitement dans le réacteur. Les particules évoluent vers une forme sphérique ($\psi(\text{sphère}) = 1$). Le changement de facteur de forme est plus important pour la catégorie de poudre fine, Al₂O₃ Grit 60. Les processus contribuant à ce changement de facteur de forme sont:

- l'attrition, qui par arrachement des excroissances des particules de forme irrégulière et par abrasion de leur surface, régularise leur forme en les rendant plus sphériques.
- Le gradient thermique dans les particules (réfractaires) entraîne une augmentation importante de la température en surface qui peut être fusionnée contribuant à rendre la particule plus sphérique.

Le fait que le changement de facteur de forme soit plus important pour les poudres les plus fines montre que ce dernier processus a une contribution importante dans ce cas. L'examen des particules au microscope optique, après l'expérience 8, a permis d'observer en effet que les particules ont subi une fusion en surface.

4.6.6 Élutriation

Les particules susceptibles d'être entraînées par les gaz vers la sortie du réacteur ont une vitesse terminale u_t , qui s'exprime, dans le cas du régime de Stokes ($Re < 0.2$), en fonction du diamètre des particules par :

$$u_t = \frac{d_p^2}{18\mu}(\rho_s - \rho_f)g \quad (4.4)$$

Le diamètre des particules susceptibles d'être éluutriées est tel que :

$$d_p \leq \left(\frac{18\mu U_\infty}{(\rho_s - \rho_f)g} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (4.5)$$

où U_∞ est la vitesse du gaz dans la section supérieure du réacteur. Le diamètre maximal des poudres susceptibles d'être éluutriées a été calculé à partir de l'équation 4.5 pour les huit expériences. Pour le calcul de U_∞ , ainsi que des caractéristiques du gaz (ρ_f et μ) impliquées dans l'équation (4.5), la température du gaz dans la section supérieure du réacteur a été estimée entre sa valeur maximale (à la sortie du lit) et sa valeur minimale (température de sortie de l'eau de refroidissement). Ces différentes évaluations ont permis de calculer un diamètre maximal des poudres susceptibles d'être éluutriées variant dans la gamme: 14 - 40 μm . L'hypothèse du régime de stokes a été vérifiée. Le nombre de Reynolds varie dans la gamme: $5 \cdot 10^{-3}$ - $1.5 \cdot 10^{-2}$.

La distribution de taille des poudres éluutriées, recueillies dans le collecteur et sur le filtre, a été obtenue par sédigraphie. La figure 4.11 montre la distribution de taille dans le cas de l'expérience 4.(tableau 4.2).

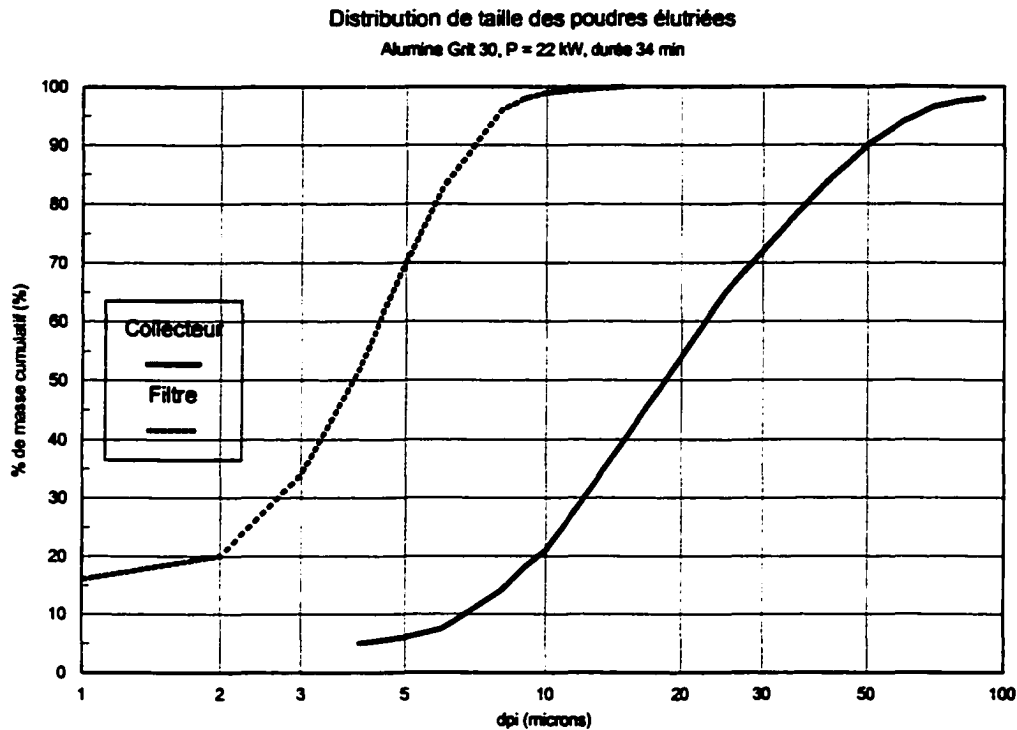


Figure 4.11 Distribution de taille des poudres éluées au cours de l'expérience 4 (tableau 4.2).

Les poudres recueillies sur le filtre ont un diamètre inférieur à 10 μm , alors que les particules recueillies dans le collecteur ont un diamètre qui peut atteindre 100 μm .

Une fraction de poudre éluée a été recueillie dans la conduite horizontale reliant le cyclone à la sortie du réacteur. Cette fraction peut atteindre jusqu'à 50% de la masse totale éluée. Une partie de cette poudre est de même taille que le matériel initial. L'entraînement de poudre grossière arrive souvent en début d'expérience au cours de la phase de charge du réacteur. Il a par la suite été minimisé par l'installation d'une grille à la sortie du gaz en haut de la colonne cylindrique. Le diamètre des poudres éluées recueillies dans le collecteur reste cependant supérieur au diamètre maximal théorique prédit par l'équation 4.5. Ceci est dû au fait que le concept de hauteur de désengagement minimal requise n'est pas respecté dans le réacteur utilisé. La hauteur de la colonne cylindrique a été limitée à 50 cm à cause de problèmes d'encombrement.

4.7 Conclusions

Les expériences effectuées pour l'analyse de l'attrition et de l'élutriation dans le réacteur à lit soufflé par plasma DC ont permis de dégager les facteurs primitifs qui ont une influence importante sur l'étendue de l'attrition pour un matériel donné.

- L'attrition est plus sévère dans le cas des particules de grosse taille
- L'attrition augmente avec la durée du traitement cependant cette augmentation n'est pas linéaire et le taux d'attrition tend à diminuer lorsque la durée de traitement augmente.
- La puissance d'opération de la torche paraît être un facteur important à cause de l'augmentation de la vitesse moyenne du jet ainsi que de la température enthalpique du plasma. L'augmentation de la vitesse du gaz dans le jet se traduit par une augmentation de la sévérité des chocs mécaniques inter particules dans le jet et contre les parois du réacteur. L'augmentation de la température enthalpique favorise les chocs thermiques.
- La fragmentation des particules par choc thermique et par chocs inter particules dans le jet et contre les parois du réacteur contribue de manière importante à l'attrition dans le réacteur surtout à puissance élevée. Ceci apparaît de manière évidente dans les figures 4.9 et 4.10.
- L'attrition dans le réacteur contribue à une augmentation du facteur de forme des particules qui tendent à être sphériques.
- Le taux de fines produit varie entre 4 et 33 % de la charge totale du réacteur dans la gamme de paramètres étudiés. Le taux le plus élevé a été obtenu à haute puissance (22 kW) et dans le cas des particules les plus grosses (Al_2O_3 Grit 30).
- La diminution relative de la taille moyenne des particules dans le réacteur varie entre 4 et 59 % du diamètre moyen initial. Ceci peut avoir des conséquences importantes sur la stabilité hydrodynamique du réacteur si le matériel atteint la taille moyenne critique déterminée dans le chapitre sur l'hydrodynamique (chapitre 2).

CHAPITRE 5

5. GAZÉIFICATION DU COKE DE PÉTROLE DANS LE RÉACTEUR À LIT SOUFFLÉ PAR PLASMA DC

5.1 Introduction

5.1.1 Le coke de pétrole

La distillation du pétrole dans les raffineries pour l'obtention des hydrocarbures légers donne un sous produit riche en carbone, le coke de pétrole. Ce résidu est obtenu après cokéfaction des fractions lourdes recueillies à la base de la colonne de distillation. La cokéfaction, appelée aussi décarbonisation, est essentiellement une opération de craquage qui vise l'obtention d'hydrocarbures légers. Le coke de pétrole résultant est caractérisé par un rapport massique carbone/hydrogène supérieur à 20. Ce sous produit, bien que difficilement valorisable, trouve certaines utilisations aussi bien dans l'industrie que dans les besoins ménagers.

5.1.2 Utilisations directes

L'utilisation du coke de pétrole dépend de sa qualité dont les facteurs les plus déterminants sont sa teneur en soufre et en composés métalliques. La teneur du coke de pétrole en soufre et en produits métalliques dépend de la teneur dans le pétrole brut d'origine et des procédés de raffinage et de cokéfaction utilisés [MARTIN, 1960].

Le coke brut est utilisé comme combustible économique pour les besoins ménagers ainsi qu'en industrie. Son utilisation comme fuel est limitée par sa teneur en soufre (à cause des normes de plus en plus sévères sur les émissions gazeuses) ainsi que par sa compétitivité au niveau des coûts par rapport au charbon, à d'autres produits pétroliers propres et au gaz naturel. Comme combustible, il est souvent utilisé mélangé au charbon.

Le coke à faible teneur en soufre (généralement moins de 2.5% en poids) est utilisé dans les hauts fourneaux en métallurgie comme source d'énergie, comme agent réducteur et comme source de carbone. C'est le secteur de métallurgie qui consomme le plus de coke produit à travers le monde (plus de 85%).

Le coke de qualité supérieure (faible teneur en soufre et en métaux) est calciné pour la production du carbone amorphe qui sert à la fabrication des électrodes utilisées dans l'industrie d'aluminium. Le coke à faible teneur en soufre et en métaux, après calcination, est aussi une source de carbone importante pour la production des carbures et du graphite.

5.1.3 Valorisation par gazéification

Les procédés de gazéification applicables au charbon peuvent s'appliquer au coke qui est cependant caractérisé par une très faible réactivité.

L'objectif de la gazéification est la transformation du solide en gaz riche en CO et H₂, qui peut être utilisé soit comme gaz combustible soit comme gaz de synthèse pour des hydrocarbures plus complexes.

Le procédé de gazéification le plus simple utilise la réaction dite de gaz à l'air qui est exothermique et ne nécessite pas d'apport de chaleur auxiliaire.



Pour augmenter la proportion de gaz combustible et ainsi le pouvoir calorifique, on utilise la réaction dite de gaz à l'eau ou "vapogazéification" en injectant simultanément de la vapeur d'eau dans le gazogène.



Les réactions (5.2) et (5.3) sont endothermiques, la chaleur nécessaire est fournie par la réaction (5.1) exothermique.

Si la gazéification est conduite à une pression excédant 35 atm, il y a en plus génération de méthane via la réaction d'hydrogazéification:



Le méthane augmente le pouvoir calorifique du gaz et l'exothermicité de la réaction contribue à réduire la chaleur nécessaire fournie par la combustion (5.1).

L'utilisation de l'oxygène au lieu de l'air pour la réaction de combustion permet d'obtenir un gaz moins dilué et de valeur énergétique plus élevée. Pour ajuster le rapport H₂/CO dans le gaz de synthèse, la réaction catalytique de la vapeur d'eau et du monoxyde de carbone "water-gas shift" (5.5) est utilisée.



D'autres voies de gazéification telles que la conversion catalytique, l'hydrogazéification et la méthanation catalytique sont possibles. Les différentes voies de gazéification ainsi que les types de gazogènes utilisés sont décrits en détails dans les références [FERRETTI, 1982], [WEN et Coll., 1979] et [MARTIN, 1981].

5.1.4 Objectifs de l'étude

Après la réalisation et la caractérisation du réacteur à lit soufflé par plasma DC, le test du réacteur comme réacteur potentiel pour les réactions solide/gaz à haute température s'inscrit comme une suite logique de cette étude. La gazéification du coke de pétrole par le dioxyde de carbone (CO_2) a été choisie comme application. Le choix de la réaction de Boudouard a été dicté par la disponibilité dans la littérature de nombreuses études de mécanismes et de cinétique de cette réaction. En effet, elle représente avec la réaction de combustion du carbone dans l'oxygène les deux réactions solide/gaz les plus rencontrées en gazéification et les plus étudiées. Cette réaction étant fortement endothermique ($\Delta H_{298}^0 = 41.2$ kcal/mole) et le niveau de température requis pour observer un rendement appréciable étant élevé ($T \geq 1000$ K), l'utilisation du jet de plasma comme source énergétique paraît être un choix adéquat. Le coke de pétrole, bien que de composition complexe, est surtout vu comme une source de carbone. Il peut être aussi vu comme un déchet à valoriser.

5.2 Revue bibliographique

5.2.1 Thermodynamique de la gazéification

L'analyse de la thermodynamique de la gazéification est importante pour l'évaluation des performances limites d'un processus de gazéification ainsi que pour le choix des conditions opératoires favorisant les produits souhaités.

Pour déterminer les caractéristiques d'équilibre de la gazéification du coke de pétrole, il est nécessaire de connaître les énergies libres standard des réactifs et des produits. Pour la majorité des espèces gazeuses présentes dans un tel système, cette information est disponible dans une grande variété de tables et corrélations. L'une des sources les plus utilisées est "JANAF Thermochemical Tables" [STULL et Coll., 1971]. Les propriétés thermochimiques du coke de

pétrole au même titre que d'autres produits complexes similaires tels que le charbon et les résidus charbonniers sont mal connues. La mesure de ces propriétés est très difficile à cause de la nature hétérogène complexe de ces composés comparativement au graphite. Une des techniques utilisées dans l'estimation des propriétés de ces composés complexes reste l'extrapolation ou l'interpolation à partir de celles de composés aromatiques solides [KRICORIAN, 1972]. Mais il n'est guère possible d'estimer l'incertitude résultant de l'emploi de cette technique [JOHNSON, 1979]. Comme alternative, les calculs des compositions à l'équilibre ainsi que l'estimation des chaleurs de réaction assimilent la phase solide à du graphite dont les propriétés thermochimiques sont bien connues. Des états de pseudoéquilibre sont aussi définis en définissant une constante de pseudoéquilibre avec une valeur de coefficient d'activité a_c associée au carbone réagissant supérieure à l'unité ($a_c(\text{graphite}) = 1$) [JOHNSON, 1979].

Système Carbone-CO ; -CO

En présence de dioxyde de carbone, le carbone réagit selon la stœchiométrie décrite par la réaction (5.2) pour fournir du monoxyde de carbone. L'état d'équilibre du système carbone-dioxyde de carbone- monoxyde de carbone est fonction de la température et de la pression. La fraction molaire du CO à l'équilibre peut être calculée à partir de la constante d'équilibre K qui s'écrit en fonction des activités des réactifs et produits de la réaction:

$$K = \frac{a_{CO}^2}{a_{CO_2} a_C} \quad (5.6)$$

Où a_{CO} , a_{CO_2} et a_c sont respectivement les activités de CO, CO₂ et du carbone.

Pour la pression opératoire ($P = 1 \text{ atm}$), les activités des gaz sont égales à leur pressions partielles et l'activité du carbone (assimilé au graphite) à l'unité. D'où:

$$K = \frac{P_{CO}^2}{P_{CO_2}} = P \cdot \frac{Y_{CO}^2}{Y_{CO_2}} \quad (5.7)$$

P_{CO_2} , P_{CO} et P sont respectivement les pressions partielles de CO₂, CO et la pression totale. Y_{CO} et Y_{CO_2} sont les fractions molaires de CO₂ et CO à l'équilibre.

Les données thermodynamiques pour la réaction sont rapportées dans le tableau 5.1 tiré de la référence [WEN et Coll., 1979].

TABEAU 5.1 **DONNÉES THERMODYNAMIQUES POUR LE SYSTÈME**
CARBONE -CO₂- CO [WEN et Coll., 1979].

T (K)	ΔG_T° (kcal/mole)	$\text{Log}_{10}(K)$	K (atm⁻¹)	ΔH_T° (kcal/mole)
298.16	28.64	-20.99	1,014.10 ⁻²¹	41.22
400	24.31	-13.28	5,225.10 ⁻¹⁴	41.43
500	20.02	-8.75	1,7706.10 ⁻⁹	41.5
600	15.73	-5.73	1,870.10 ⁻⁶	41.46
800	7.19	-1.96	1,090.10 ⁻²	41.19
1 000	-1.28	0.28	1.9	40.78
1 500	-22.03	3.21	1,622.10 ³	39.45

La figure 5.1 représente la variation de la constante d'équilibre en fonction de la température. Les valeurs utilisées sont tirées du tableau 5.1.

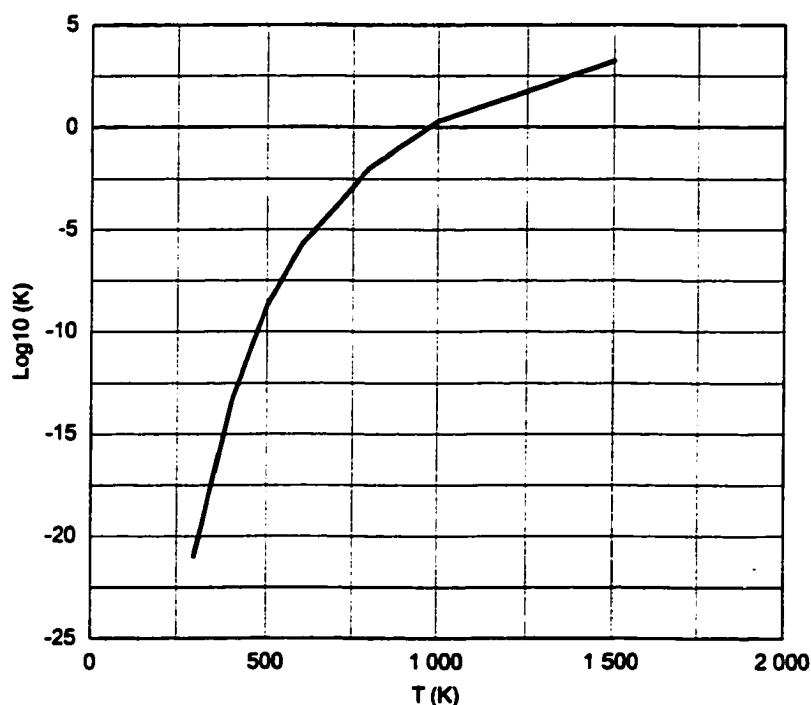


Figure 5.1 **$\text{Log}_{10}(K) = f(T)$ pour le système graphite- dioxyde de carbone**

L'équilibre est très sensible à la température et la constante d'équilibre K est supérieur à 1 à partir de 1000 K, favorisant la formation du monoxyde de carbone.

La variation de la concentration de CO à l'équilibre en fonction de la température pour différentes pressions est rapportée en figure 5.2 d'après [JOHNSON, 1979].

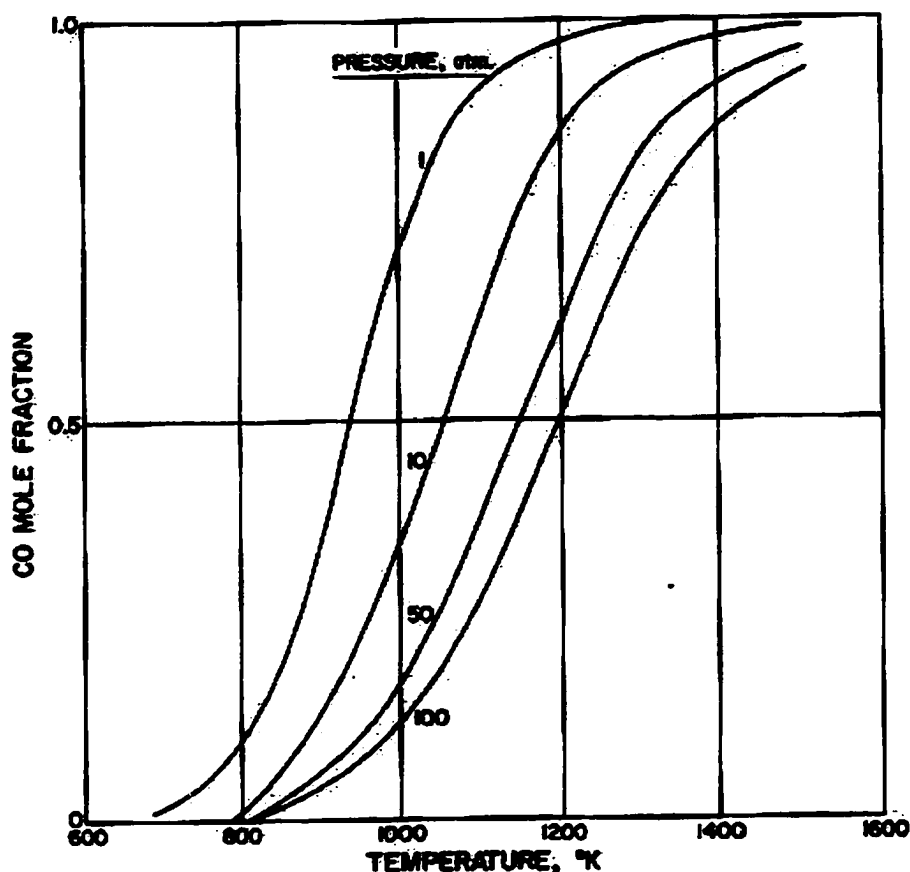


Figure 5.2 Caractéristiques d'équilibre du système C (graphite)-CO-CO₂ d'après [JOHNSON, 1979]

Conformément aux lois de l'équilibre, la fraction molaire de CO à l'équilibre augmente avec la température et diminue lorsque la pression augmente. À des températures supérieures à 1200 K, la conversion n'est plus restreinte par l'équilibre pour des pressions voisines de la pression atmosphérique.

Système C-H-O

Dans un procédé de gazéification où le carbone, l'hydrogène et l'oxygène sont présents, les gaz CO, CO₂, H₂, H₂O et CH₄ sont présents dans la phase gazeuse. La composition à l'équilibre d'un tel système peut être exprimée en fonction de la température, de la pression totale et du rapport hydrogène/oxygène (atome/atome) dans la phase gazeuse. Le calcul de la composition à l'équilibre pour ce système a été fait par Johnson [JOHNSON, 1979]. La figure 5.3

montre la composition à l'équilibre en fonction de la température et de la pression pour un rapport hydrogène/oxygène égale à 1.

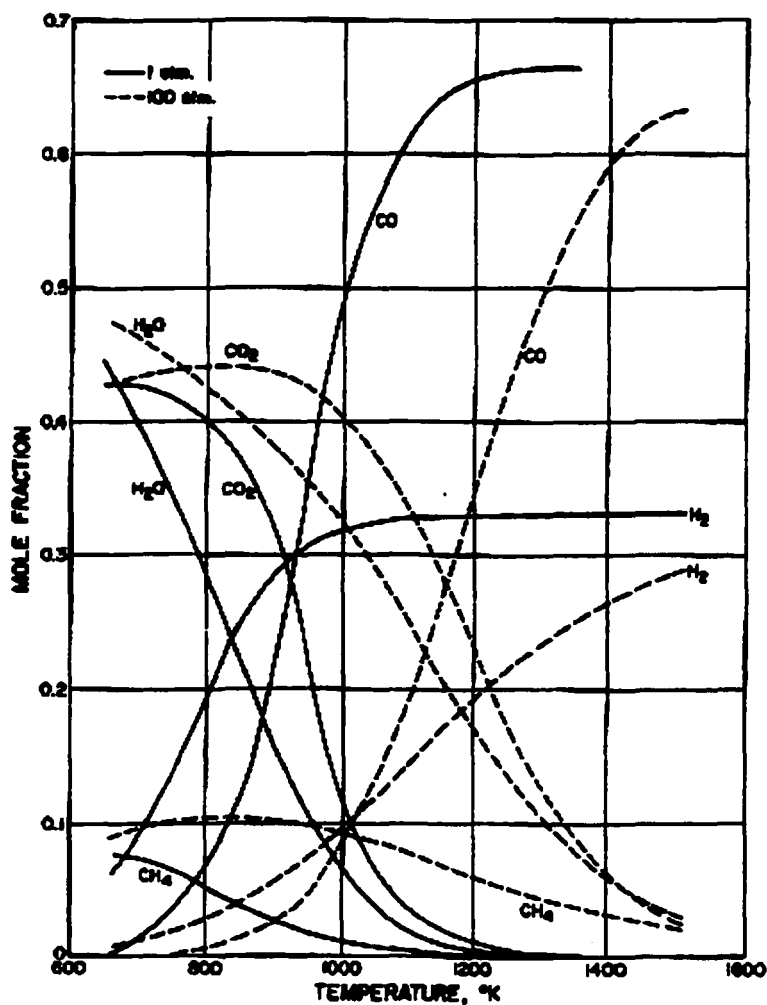


Figure 5.3 Caractéristiques d'équilibre du système C-H-O ($H/O = 1$ g-atome/g-atome) d'après [JOHNSON, 1979].

Le tableau 5.2 d'après le même auteur résume les effets des différents paramètres sur la composition à l'équilibre.

TABLEAU 5.2

TENDANCES À L'ÉQUILIBRE POUR LE SYSTÈME C-H-O
[JOHNSON, 1979]

Fraction molaire Y_i	Température	Pression	Rapport H/O
	↑	↑	↑
Y_{CO}	↑	↓	↓
Y_{CO_2}	↷	↑	↓
Y_{H_2}	↑	↓	↑
Y_{H_2O}	↓	↑	↷
Y_{CH_4}	↷	↑	↑
$\frac{Y_{CH_4}}{Y_{CH_4}+Y_{CO}+Y_{CO_2}}$	^a ↷ ↓ ^b	↑	↑

avec les symboles a: $H/O < 2$, b: $H/O \geq 2$

↑ : augmentation, ↓ : diminution, ↷ : augmente jusqu'à un maximum puis diminue.

$\frac{Y_{CH_4}}{Y_{CH_4}+Y_{CO}+Y_{CO_2}}$ représente la proportion relative du carbone présent dans la phase gazeuse sous forme de méthane. L'effet d'une augmentation de température sur cette variable dépend du rapport atomique H/O. La tendance de variation des différentes fractions molaires en fonction de la température et de la pression est aussi traduite par la figure 5.3. Le tableau 5.2 apporte des informations supplémentaires sur l'effet du rapport atomique H/O dans la phase gazeuse.

Les caractéristiques d'équilibre montrées en figure 5.3 ont été calculées en supposant que le carbone dans la phase solide a les mêmes propriétés thermodynamiques que le graphite. Pour tenir compte de l'activité du carbone dans la phase solide, Johnson [JOHNSON, 1979] montre que les caractéristiques de l'équilibre représentées en figure 5.3 restent valables à condition de définir une pseudo-pression à partir des constantes d'équilibre. Ainsi la fraction molaire de CO à l'équilibre pour une pression P , peut être déduite de la figure 5.3 pour une activité de carbone a_c en utilisant une pseudo pression P' dans l'équation 5.7 telle que: $P' = \frac{P}{a_c}$.

5.2.2 Réactions gaz-carbone

La cinétique des réactions en milieu hétérogène implique en plus de la cinétique chimique de la réaction, le transfert de masse des différentes espèces (réactifs et produits) et le transfert de chaleur entre les différentes phases. D'après Wen [WEN et Coll, 1979], les réactions de gazéification du carbone dans les résidus charbonniers "char" et dans le coke peuvent être classées en deux catégories distinctes: réactions de surface et réactions de volume. Dans les réactions de volume, le gaz réactif diffuse à l'intérieur de la particule solide poreuse et la réaction a lieu dans tout le volume de la particule. La couche de résidus (cendres) se forme à l'extérieur de la particule alors que le noyau de la particule continue à rétrécir. Dans les réactions de surface, le gaz pénètre difficilement à l'intérieur de la particule solide et la réaction est confinée à la surface externe de la particule dont le noyau rétrécit au cours de l'évolution de la réaction. Dans ces deux cas extrêmes, le coeur de la particule se rétrécit, la différence réside dans l'évolution de la concentration de carbone dans la particule comme illustré en figure 5.4 d'après [WEN et Coll., 1979].

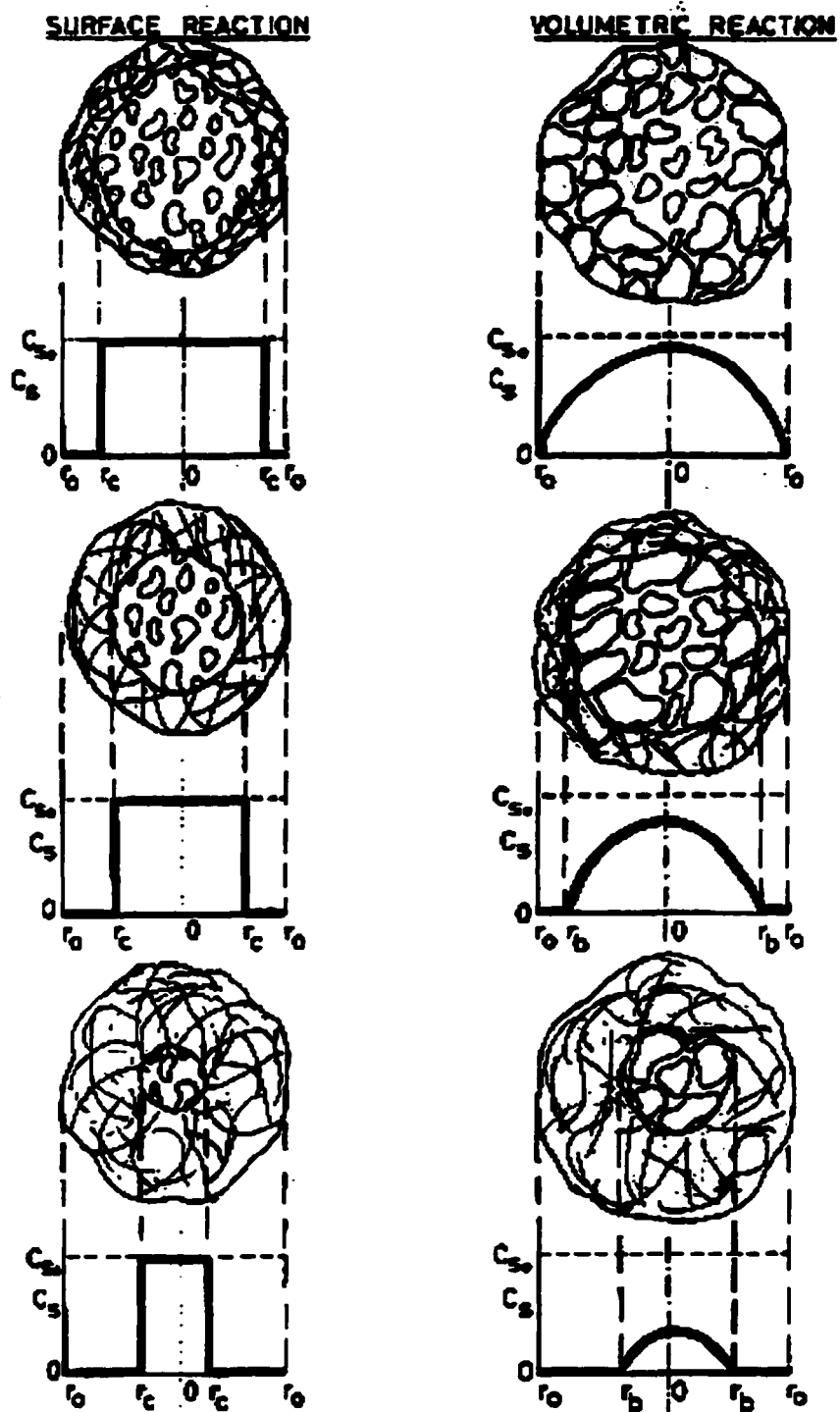


Figure 5.4 Évolution du profil de concentration du carbone dans la particule dans les deux cas: réaction de volume et réaction de surface d'après [WEN et Coll., 1979].

Les réactions lentes, comme la réaction du CO_2 avec le carbone, sont des réactions de volume. Dans ce cas, la cinétique de la réaction peut être contrôlée par une ou plusieurs des quatre étapes majeures suivantes :

1. Le transfert de masse du gaz réactif de la phase gazeuse (externe) vers la surface du solide (externe) et le transfert des produits dans le sens inverse (appelée aussi diffusion dans la couche limite ou diffusion extra-particules).
2. Le transfert de masse du gaz réactif vers la surface du solide (interne) par diffusion gazeuse à travers les pores et le transfert des produits dans le sens inverse (appelée aussi diffusion intra-particule).
3. Cinétique chimique à la surface du solide (interne et externe) par l'adsorption du gaz réactif, réarrangement des espèces adsorbées à la surface et désorption des produits.
4. Transfert de chaleur entre le gaz dans l'écoulement et la surface (externe) des particules par convection et radiation et à l'intérieur de la matrice solide par conduction.

Une théorie de trois zones de contrôle en fonction de la température a été proposée par plusieurs auteurs dont [WALKER, 1959]. Les trois zones sont montrées dans le diagramme d'Arrhenius illustré en figure 5.5 d'après cet auteur.

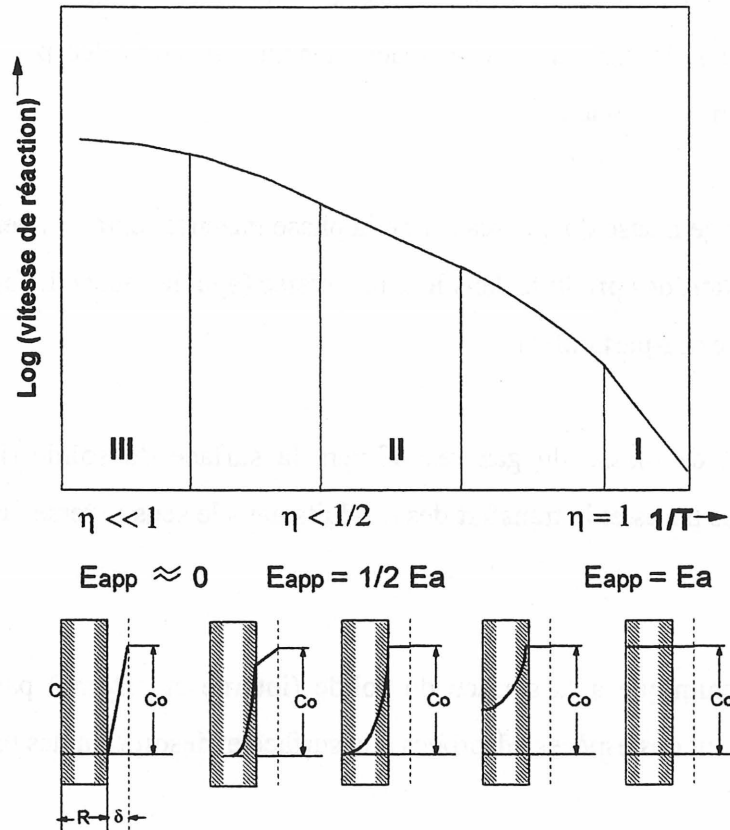


Figure 5.5 Diagramme d'Arrhénius montrant les trois zones de contrôle en fonction de la température d'après [WALKER, 1959].

Dans la zone de basse température (zone I), la réaction chimique est lente et le gaz réactif est fourni plus vite qu'il n'est consommé à l'intérieur de la particule solide. La vitesse de réaction est contrôlée uniquement par la réactivité chimique du solide (étape 3). La réaction chimique évolue uniformément à l'intérieur du solide où la concentration du gaz réactif est essentiellement égale à sa valeur à l'extérieur C_0 . L'énergie d'activation observée E_{app} est égale à la vraie énergie d'activation E_a de la réaction chimique. D'autre part, η , qui est défini comme le rapport de la vitesse de réaction mesurée à la vitesse de réaction qui serait trouvée si la concentration du gaz à l'intérieur du solide est uniformément égale à C_0 (contrôle chimique), est égal à l'unité dans cette zone.

Dans la zone de températures intermédiaires (zone II), la réaction chimique est rapide alors que la diffusion du gaz réactif et des produits est relativement lente. La vitesse de la

réaction est contrôlée conjointement par les étapes 2 et 3. L'énergie d'activation apparente est égale à la moitié de la vraie énergie d'activation et le coefficient η est inférieur à $\frac{1}{2}$.

Dans la zone de hautes températures (zone III), la vitesse de la réaction chimique est très élevée et ne constitue plus une étape limitante. Le gaz réactif est consommé immédiatement à la surface externe du solide. La concentration du gaz réactif à la surface externe du solide est très faible et la diffusion du gaz dans la couche limite δ devient l'étape limitante, la vitesse de réaction est contrôlée par l'étape 1. Toute la réaction se passe à la surface externe du solide où la concentration du gaz réactif est proche de zéro. Comme le transfert de masse dans la couche limite n'augmente que faiblement lorsque la température augmente, l'énergie d'activation apparente est faible et le coefficient $\eta \ll 1$.

Comme illustré en figure 5.5, des régimes de transition existent entre les différentes zones identifiées. Dans ces zones intermédiaires les effets combinés de ceux décrits ci-dessus sont présents. Le changement du régime de contrôle avec la température de réaction est graduel comme illustré en figure 5.5. La nature des transitions ainsi que les intervalles de température qui identifient les différentes zones de contrôle dépend des paramètres réactionnels tels que la diffusivité effective du gaz dans les pores de la particule, la taille de la particule, la surface réactive (interne et externe) et la réactivité chimique de la particule poreuse.

L'influence de la taille des particules discutée par plusieurs auteurs, [LEVENSPIEL, 1972], [SZEKLEY et Coll., 1976] et [MULCAHY et Coll., 1969], est particulièrement importante.

Levenspiel [LEVENSPIEL, 1972] a résumé les relations de dépendance du temps nécessaire à achever le même taux de conversion, t , vis à vis du rayon de la particule, R , sous différents régimes de contrôle pour des particules sphériques dont le changement de taille est négligé (tableau 5.3).

TABEAU 5.3 **RELATIONS ENTRE LE TEMPS NÉCESSAIRE À ACHEVER UN TAUX DE CONVERSION DONNÉ ET LE RAYON DE LA PARTICULE.**

Relation t - R	Régime de contrôle
$t \propto R^{1.5 \text{ à } 2.0}$	Diffusion dans la couche limite autour de la particule
$t \propto R^2$	Diffusion dans la couche de cendre autour de la particule
$t \propto R$	Réaction chimique

À titre de comparaison entre les vitesses des différentes réactions de gazéification, Walker [WALKER et Coll., 1959], dans une revue des études faites dans les mêmes conditions opératoires et avec le même type de carbone, donne les vitesses relatives de ces réactions (tableau 5.4). La vitesse de la réaction C-CO₂ est prise comme unité.

TABEAU 5.4 **VITESSES RELATIVES DES RÉACTIONS DE GAZÉIFICATION À T = 800 °C ET À P = 0.1 atm. [WALKER et Coll., 1959].**

Réaction	Vitesse relative
C - O ₂	1. 10 ⁵
C - H ₂ O	3
C - CO ₂	1
C - H ₂	3.10 ⁻³

La combustion du carbone dans l'oxygène est de loin la réaction la plus rapide. La vitesse de réaction de combustion est de 5 ordre de grandeur supérieure à celles des réactions C - H₂O et C - CO₂ qui sont du même ordre de grandeur. La réaction C - H₂ est la plus lente, sa vitesse est de 3 ordre de grandeur inférieure aux précédentes.

5.2.3 Cinétique de la réaction CO₂ - C

Les données expérimentales de gazéification du carbone avec le dioxyde de carbone ont été corrélés avec différentes expressions empiriques, cependant sous des conditions de contrôle chimique, l'expression cinétique (5.8), de type Langmuir-Hinshelwood, est celle qui donne la

meilleur satisfaction [WALKER et Coll., 1959], [GADSBY et Coll., 1948], [STRANGE et Coll., 1976], [LEWIS et Coll., 1949], [KEILMAN, 1983] et [MING-YUAN, 1984].

$$r = \frac{k_1 P_{CO_2}}{1 + k_2 P_{CO} + k_3 P_{CO_2}} \quad (5.8)$$

où r est la vitesse spécifique de réaction rapportée soit à la masse de carbone, soit à la surface totale externe ou encore à la surface totale des sites actifs: surface interne (accessible via les pores) et surface externe. P_{CO_2} et P_{CO} sont les pressions partielles de CO_2 et de CO . Les constantes k_1 , k_2 et k_3 sont des paramètres cinétiques qui dépendent de la température et de la nature du carbone. Leur signification est mieux montrée par le mécanisme de réaction justifiant l'expression (5.8). Walker [WALKER et Coll., 1959] postule un mécanisme en 6 étapes basé sur l'échange d'oxygène et analogue à celui des réactions catalytiques. Le mécanisme implique aussi l'adsorption et la désorption de gaz à la surface de carbone active. Dans ce cas les constantes k_1 , k_2 et k_3 apparaissent comme étant des fonctions d'une ou plusieurs constantes de vitesse des réactions élémentaires impliquées dans le mécanisme. Pour des pressions voisines de la pression atmosphérique, Wen [WEN et Coll., 1979] dans une revue des travaux antérieurs, a proposé un schéma simplifié du mécanisme postulé par Walker, en deux étapes :



C_f représente un site de carbone libre et $C(O)$ représente un complexe carbone-oxygène adsorbé. j_1 , j_2 et j_3 représentent les constantes des réactions élémentaires. Wen [WEN et Coll., 1979] montrent que dans ce cas les constantes k_1 , k_2 et k_3 de l'équation (5.8) s'expriment en fonction de j_1 , j_2 et j_3 par:

$$k_1 = j_1 \quad (5.11)$$

$$k_2 = \frac{j_2}{j_3} \quad (5.12)$$

$$k_3 = \frac{j_1}{j_3} \quad (5.13)$$

L'équation (5.8) ainsi que le mécanisme décrit par les équations (5.9) et (5.10) montrent que le monoxyde de carbone a un effet inhibiteur sur la gazéification du carbone par le dioxyde de carbone. Ce point a été discuté également par [TURKDOGAN et Coll., 1970].

Les cas limites suivants sont prévisibles à partir de l'équation (5.8) [WALKER et Coll., 1959]:

- À faible température, la production du CO est faible, $k_2 P_{CO} \ll 1$, et à pression partielle de CO_2 élevée, $k_3 P_{CO_2} \gg 1$, l'équation (5.8) se réduit à :

$$r = k' = \frac{k_1}{k_3} \quad (5.14)$$

La réaction est d'ordre 0 dans ce cas.

- À faible température, $k_2 P_{CO} \ll 1$, et à pression partielle de CO_2 faible, $k_3 P_{CO_2} \ll 1$, l'équation (5.8) se réduit à:

$$r = k_1 P_{CO_2} \quad (5.15)$$

La réaction est d'ordre 1 dans ce cas.

D'autre part, certaines études citées par Walker [WALKER et Coll., 1959], ont montré que, k_2 et k_3 décroissent rapidement lorsque la température augmente. Donc à hautes température et à pressions modérées, les inégalités: $k_2 P_{CO} \ll 1$ et $k_3 P_{CO_2} \ll 1$ restent valables et l'équation (5.8) est réduite à l'équation (5.15) avec un ordre de réaction de 1 dans ce cas aussi.

Dans une revue des études antérieures sur l'effet de la pression partielle de CO_2 sur l'ordre de la réaction Wen [WEN et Coll., 1979] conclut que l'ordre de réaction peut être considéré égal à 1 pour des pressions n'excédant pas la pression atmosphérique et que pour des pressions plus élevées, la réaction est d'ordre 0.

De manière générale, les ordres de réaction rapportés dans la littérature varient dans la gamme 0 - 1. L'ordre de réaction mesuré dépend des conditions expérimentales utilisées: pression, température, nature du carbone... Quelques études sont rapportées dans le tableau 5.5 ci dessous.

TABLEAU 5.5 **ORDRE DE RÉACTION ET ÉNERGIE D'ACTIVATION**
MESURÉS PAR QUELQUES AUTEURS DANS DIFFÉRENTES
CONDITIONS OPÉRATOIRES.

Nature du carbone	Température (°C)	Pression (atm)	Ordre de réaction	Énergie d'activation (kcal/mole)	Référence
Résidus de charbon de noix de coco	700 - 830	1	1	59	GADSBY et Coll., 1948
Résidus de charbon, Hydrane	750 - 900	18 ; 35	0	54.5	FUCHS et Coll., 1975
Coke de pétrole et graphite	750 - 910	1	0.6 - 0.8	45 - 70	TYLER et Coll., 1975
Graphite et charbon de bois	700 - 1200	1 - 10	0.5	68	TURKDOGAN et Coll., 1969
Charbon et résidus de charbon	840 - 1100	1	1	59.26	DUTTA et Coll., 1977
Graphite	875	1	0.6 - 1	55 - 60	BLAKELY et Coll., 1965
Graphite	900 - 1000	25 ; 40	0	49 - 73	TURKDOGAN et Coll., 1968
Coke de pétrole et graphite	900 - 1100	1	1	47 - 48	WALKER et Coll., 1953
Graphite	960 - 1120	1	1	103.5	BIEDERMAN et Coll., 1976
Charbon de bois ,graphite et coke	800 - 900	1	0.5	- -	TURKDOGAN et Coll., 1970

Les énergies d'activations rapportées par les études présentées dans le tableau 5.5 varient entre 45 et 103 kcal/mole. Une valeur de 68 kcal/mole, pour des conditions de contrôle purement chimiques est généralement admise [WALKER et Coll., 1959].

Des expressions autre que l'équation 5.8, sont aussi utilisées dans la littérature. Wen [WEN et Coll., 1979] propose une forme empirique telle que l'équation 5.16 :

$$\frac{dx}{dt} = a_v k_v C_{CO_2}^n (1 - x) \quad (5.16)$$

où C_{CO_2} est la concentration de CO_2

$$\alpha_v = \frac{\text{Surface des pores disponible au stade de conversion (x) par unit  de poids}}{\text{Surface des pores initiale (x=0) par unit  de poids}}$$

k_v est la constante de vitesse.

x est la fraction de carbone convertie

n est l'ordre de la r action ($0 \leq n \leq 1$)

α_v est fonction du taux de conversion et de la nature du carbone.

Selon Wen [WEN et Coll., 1979], une expression telle que l' quation 5.16 est plus utile pour le design de gazog nes que l' quation (5.8). La variation du facteur α_v en fonction du taux de conversion reste cependant difficile   d terminer.

La surface externe et interne (accessible   travers les pores) est un param tre important dans la r activit  du carbone dans les r sidus charbonniers et le coke. La surface totale r active d pend de la nature de l' chantillon, ses traitements ult rieurs et son histoire thermique. De plus, la surface r active  volue en cours de r action   cause de la variation de la structure poreuse dans le solide. Des auteurs tels que [WALKER et Coll., 1953] et [THOMAS, 1977] ont montr  que la r activit  du carbone  volue dans le m me sens que la surface interne disponible. Elle augmente en d but de r action pour atteindre un palier avant de d cro tre en fin de r action. Il y a expansion des pores du solide en d but de r action, cette expansion atteint un palier ensuite une coalescence des pores est observ e ce qui diminue la surface interne r active.

Les pores dans les solides   base de carbone (charbon, r sidus charbonniers et coke) sont class s selon leur dimension en trois cat gories [WEN et Coll., 1979]:

- Macropores (500 nm - quelques μm). La surface interne due   ces pores est mesur e par porosom trie   mercure.
- Mesopores ou pores transitionnels (2 - 50 nm). Leur surface est mesur e par porosim trie   mercure ou par adsorption de N_2 ou CO_2 (technique BET).
- Micropores (< 2 nm). Leur surface est mesur e par adsorption de N_2 ou CO_2 (technique BET).

La surface interne due aux pores dans les solides à base de carbone varie dans une large gamme: 10 à 400 m²/g. Après pyrolyse du produit brut, un accroissement important de la surface interne est observé et peut atteindre 20 fois la surface initiale. Cet accroissement est dû aux matières volatiles libérées dans le solide chauffé et qui créent des pores supplémentaires dans le volume du solide avant de pouvoir se libérer en surface. La surface interne dans les produits à base de carbone tels que les résidus charbonniers et le coke est typiquement de l'ordre de 50 m²/g. La majeure partie de cette surface (> 25 m²/g) est constituée par les micropores. La mesure de la surface interne du solide ainsi que de son évolution au cours de la réaction (terme α , dans l'équation 5.16) n'est pas aisée. De plus, une partie importante de cette surface (micropores en particulier) n'est pas accessible au gaz réactif au cours des réactions de gazéification. Les auteurs préfèrent alors utiliser des expressions de vitesse de réaction basées sur la surface externe des particules [SMOG et Coll., 1985]

D'autres phénomènes affectant la réactivité des produits à base de carbone au cours des processus de gazéification, tels que les effets catalytiques, sont discutés dans la littérature [WEN et Coll., 1979], [SMOG et Coll., 1985]. La matière minérale contenue dans les résidus charbonniers et le coke (\approx 6%) peut catalyser ou inhiber certaines réactions de gazéification. Le tableau 5.6 d'après [WEN et Coll., 1979] résume les différents éléments qui ont des effets catalytiques sur les différentes réactions de gazéification.

TABLEAU 5.6 LES ÉLÉMENTS AYANT DES EFFETS CATALYTIQUES SUR LES DIFFÉRENTES RÉACTIONS DE GAZÉIFICATION.

Réaction	Élément catalyseur
C - O ₂	Ni, Fe, Co
C - H ₂ O	Ni, K, Na
C - CO ₂	Ni, K, Na, Fe, Co, Ca, Li
C - H ₂	Ni, K

L'importance des effets catalytiques des différents éléments dépend de leur forme de présence dans la matière minérale (oxydes, carbonates, métal,...) ainsi que des conditions

d'opération. L'effet catalytique est en général plus important à basse température [WALKER et Coll., 1968], [SMOOT et Coll., 1985], [WEN et Coll., 1979].

5.3 Matériel et méthodes

5.3.1 Montage expérimental

La figure 5.6 représente le schéma global du montage expérimental montrant les différentes parties: réacteur, panneau de contrôle des gaz, système d'acquisition et spectromètre de masse.

La figure 5.7 montre la photo du réacteur. C'est essentiellement le même que celui précédemment décrit. La base conique a été cependant modifiée. La figure 5.8 montre le schéma du réacteur avec les différentes parties : torche, base conique, colonne cylindrique, alimenteur de poudre et circuit de sortie de gaz comprenant le cyclone, le filtre et le collecteur. La conception de la base conique du réacteur est montrée en figure 5.9.

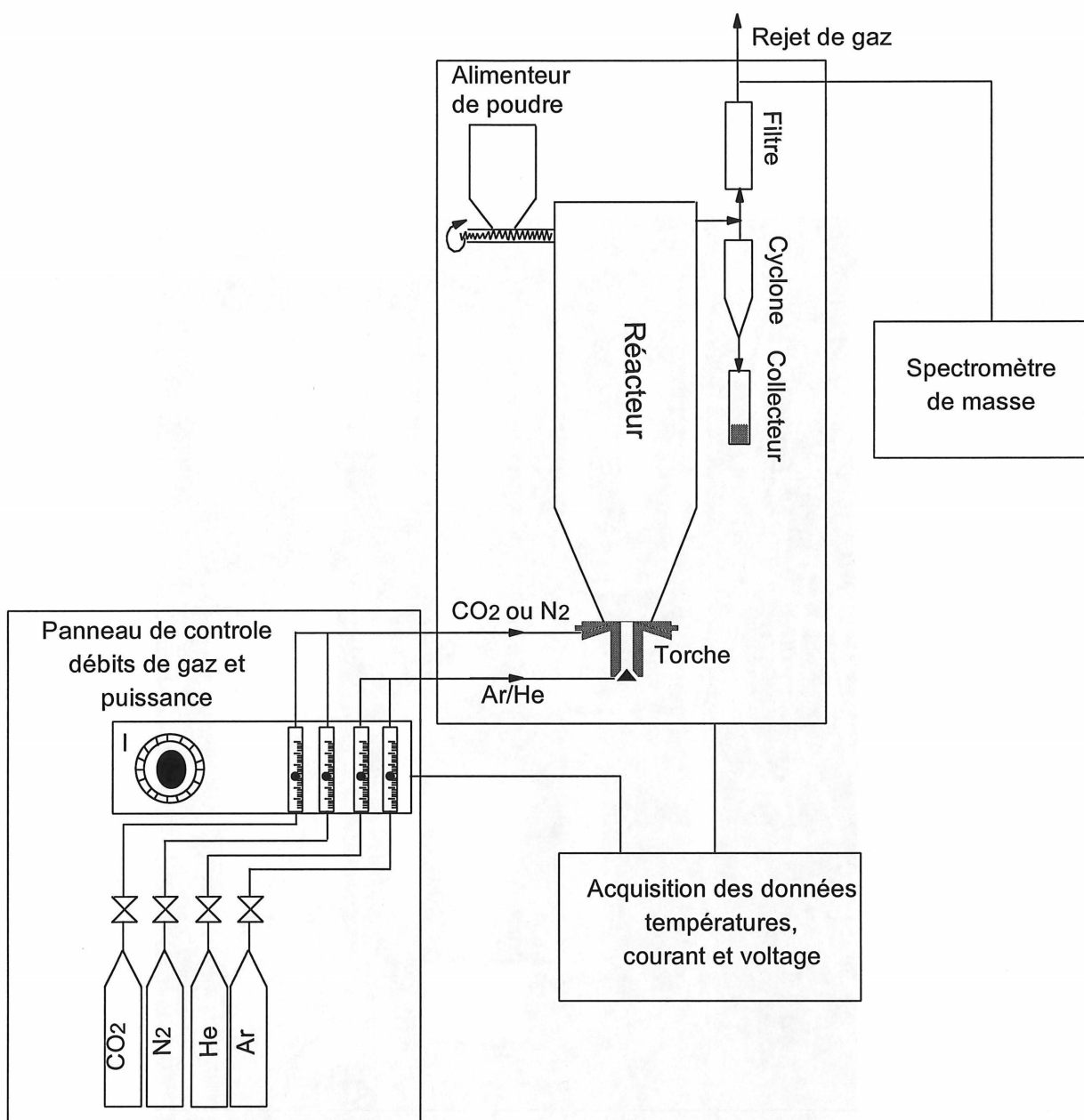


Figure 5.6 Schéma global du montage d'étude de la gazéification du coke par CO_2 .

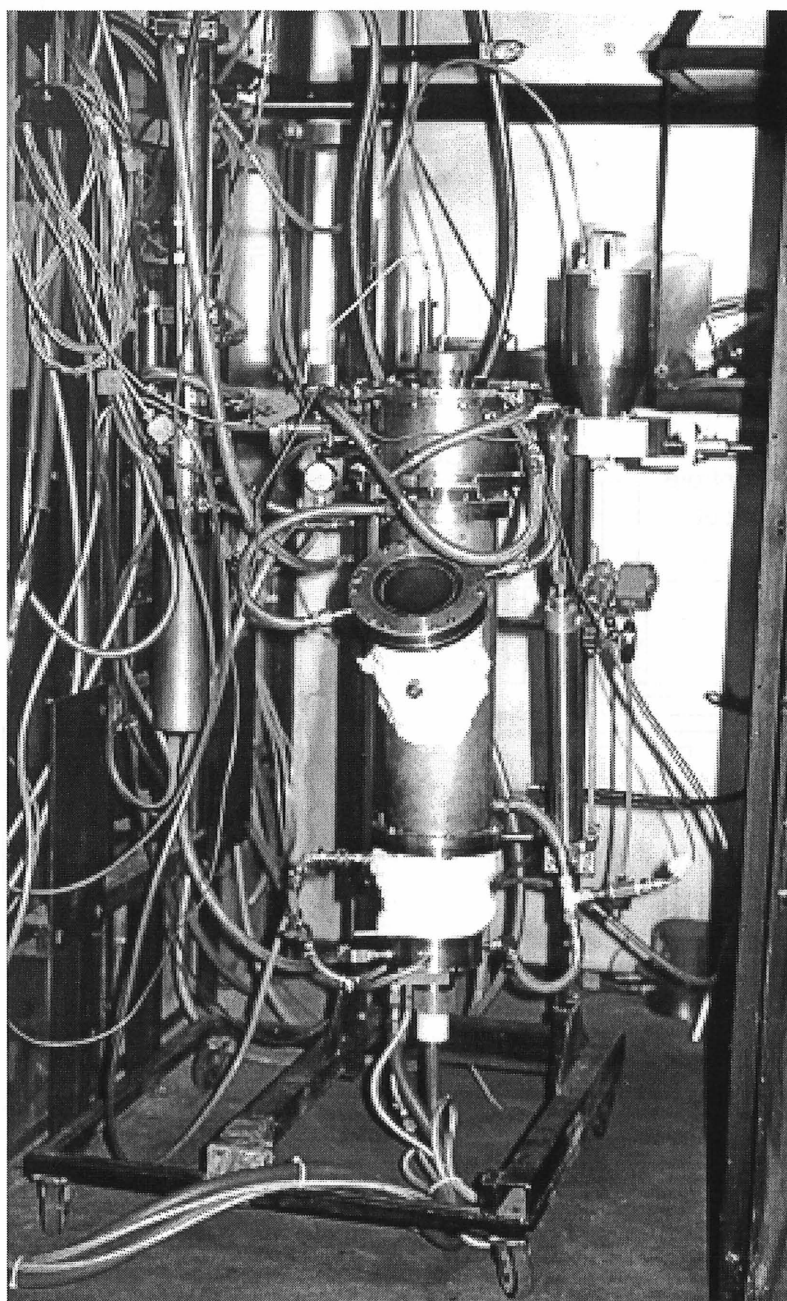


Figure 5.7 Photo du réacteur

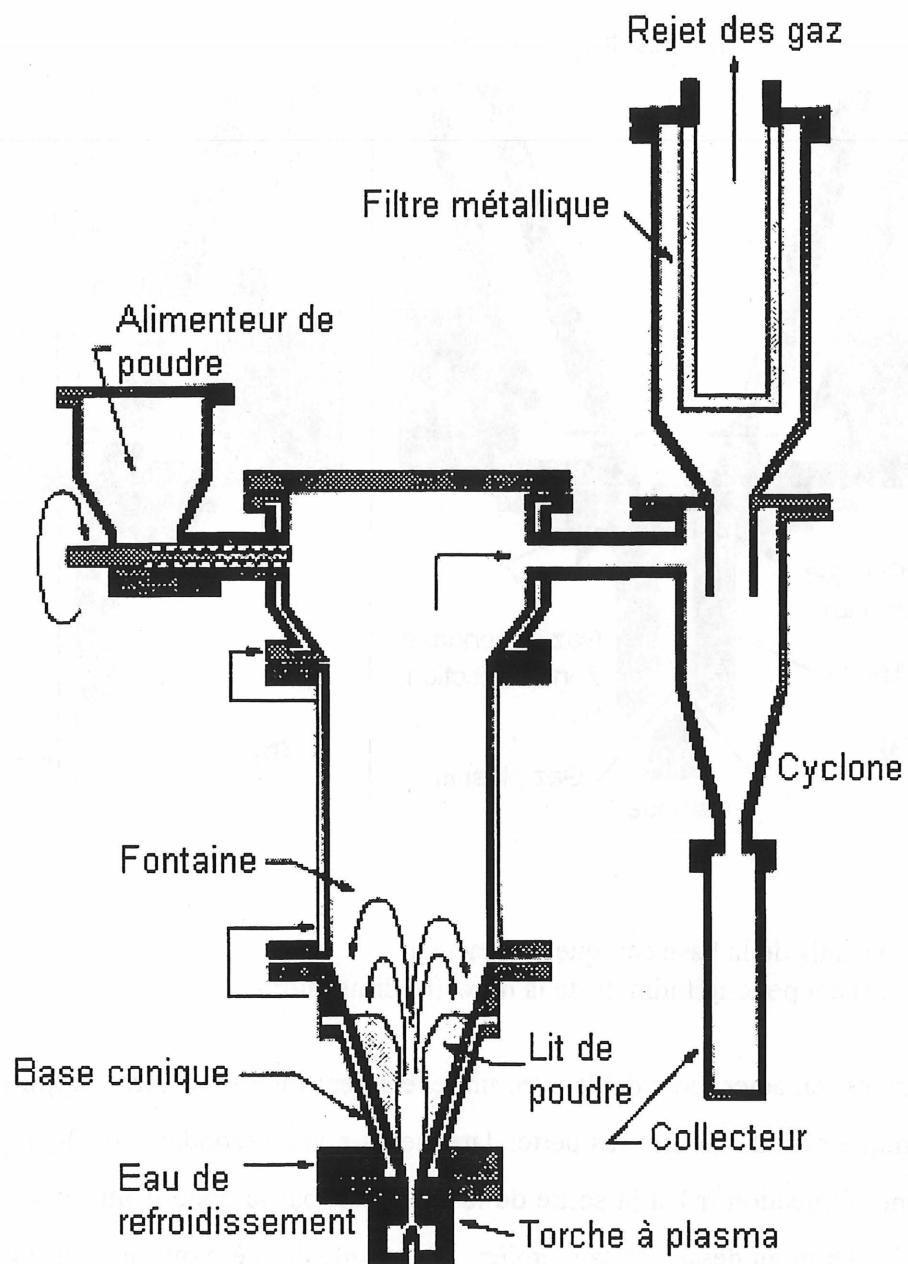


Figure 5.8 Schéma du réacteur

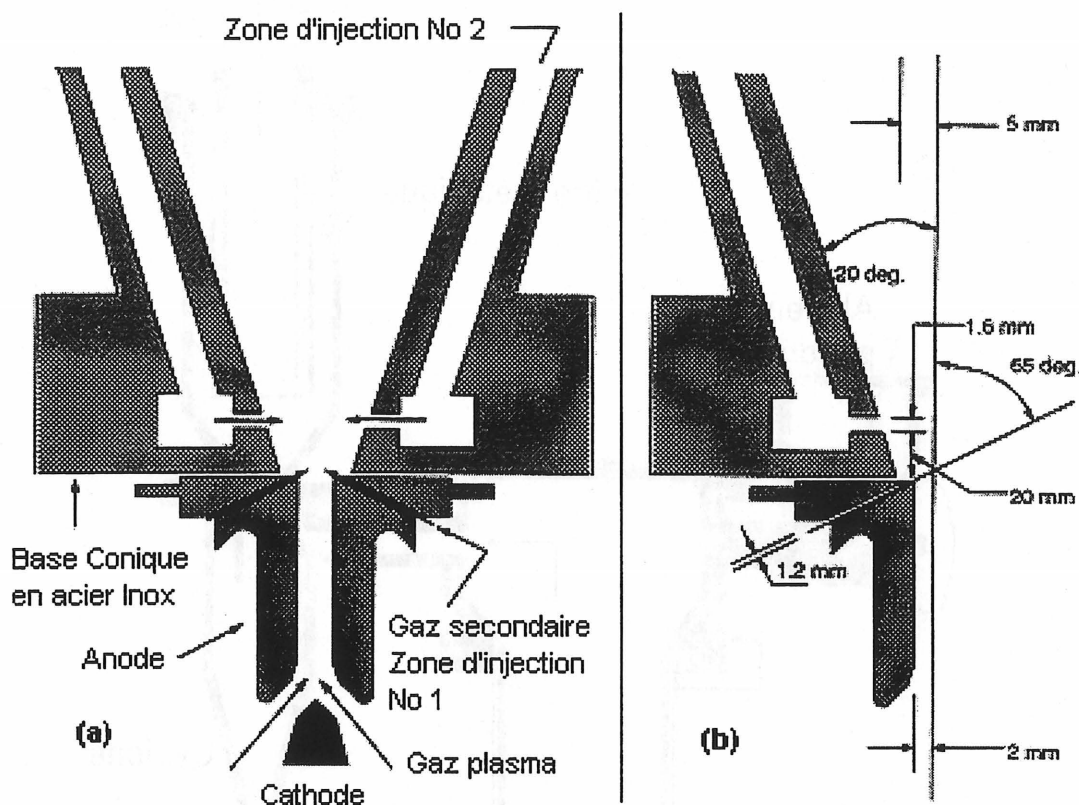


Figure 5.9 Détails de la base conique du réacteur.
(a) coupe longitudinale de la base. (b) dimensions

Le cône est en acier inoxydable avec un revêtement interne en zircon qui joue le rôle de barrière thermique afin de réduire les pertes latérales. Le gaz secondaire (CO_2) peut être injecté soit par la zone d'injection n°1 à la sortie de la buse, soit par la zone d'injection n°2 située à la base du cône à 20 mm au dessus de la première. Dans cette dernière option le gaz circule d'abord à travers un circuit aménagé dans le cône en acier. Ainsi, il est préchauffé en récupérant une partie de la chaleur perdue dans la partie conique. Les différentes zones d'injection ainsi que les dimensions sont précisées dans la figure 5.9.

Le gaz plasmagène est un mélange d'argon et d'hélium. Le choix de l'hélium au lieu de l'azote a été fait pour permettre la détection du monoxyde de carbone CO par le spectromètre de masse. En effet l'azote a un pic de masse de 28 qui est le même que le pic principal produit par

CO. Le port d'échantillonnage du gaz de sortie est situé juste après la sortie du filtre métallique poreux.

Trois thermocouples sont insérés à partir du couvercle du réacteur dans des positions radiales différentes et peuvent être positionnés verticalement afin de mesurer la température en différents points du lit. Les positions des thermocouples sont précisées ci-après.

5.3.2 Mesures et analyses

Mesures

Les débits de gaz sont réglés et mesurés à l'aide de rotamètres à bille installés sur le panneau de contrôle. Chaque débitmètre a été soigneusement étalonné à l'aide d'un appareil d'étalonnage (*Singer american meter division*).

Le bilan énergétique sur la torche est fait continuellement à l'aide de mesures du courant, du voltage, du débit d'eau de refroidissement et de la température d'entrée et de sortie de l'eau.

La température dans le lit est mesurée grâce à trois thermocouples insérés à partir du couvercle du réacteur à différentes positions radiales. Les thermocouples sont de type "K" avec un diamètre faible (1.6 mm) afin d'avoir un temps de réponse très faible (0.3 s) [OMEGA, 1992]. Les positions axiales et radiales de ces thermocouples sont illustrées en figure 5.10 ci dessous.

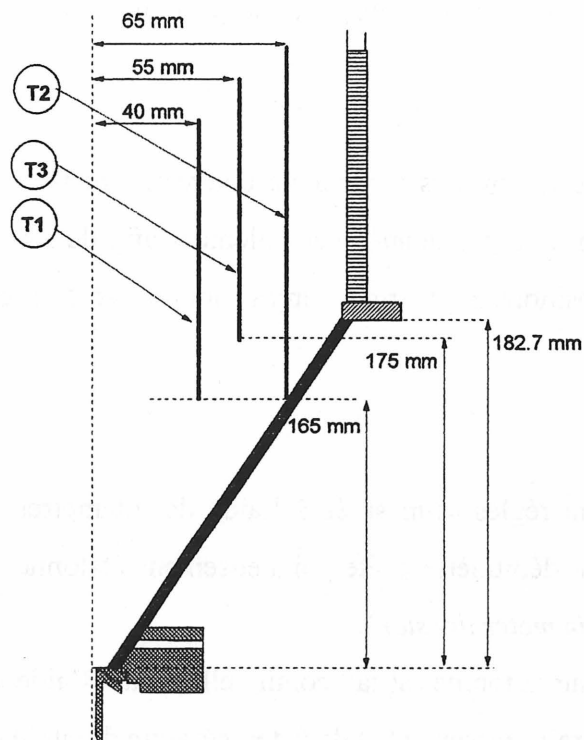


Figure 5.10 Positions axiales et radiales des thermocouples utilisés pour la mesure de la température dans le lit.

Les fractions molaires du gaz échantillonné à la sortie du réacteur sont mesurées grâce à un spectromètre de masse de type quadripôle (VG Micromass-PC 300D). L'appareil peut fonctionner selon deux modes : qualitatif et quantitatif. La mesure des fractions molaires des gaz de sortie du réacteur utilise le mode quantitatif. Pour ce mode, l'appareil est calibré avant chaque essai. Pour la calibration, deux mélanges de gaz encadrant les gammes de concentration des gaz de sortie anticipées, sont utilisés. Dans le fonctionnement en mode qualitatif, l'appareil permet d'analyser les différents gaz présents à la sortie du réacteur. Les pics de masse détectés par l'appareil sont ensuite analysés manuellement à l'aide d'une table qui permet l'allocation de chaque pic à un gaz donné selon l'intensité du pic et son rang (principal, secondaire...).

Analyses

Analyses chimiques

Les méthodes d'analyse utilisées pour le coke sont celles établies pour la caractérisation du charbon. Elles sont décrites en détail dans plusieurs références dont [WEN et Coll., 1979] et [MONTGOMERY, 1978]. L'analyse peut être détaillée "Ultimate analysis", ou plus restreinte

“proximate analysis”. Une description des types d’analyse ainsi que les résultats d’analyse du coke brute sont présentés en Annexe A3.

Les échantillons recueillies au cours des différentes expériences ont été analysés pour déterminer la teneur en eau, en volatiles et en cendres et/ou la composition élémentaire de la matière analysée. Le soufre étant un élément important à considérer pour la valorisation du coke, la teneur en soufre a été déterminée dans les échantillons analysés. Certaines analyses chimiques (notamment la détermination de la teneur en soufre) ont été commandées auprès d’une société spécialisée en la matière: *Commercial Testing & Engineering CO*. D’autres analyses ont été commandées auprès du laboratoire d’analyse du groupe *GRTPC* de l’université de Sherbrooke.

Analyses au MEB

Pour, les analyses au microscope électronique à balayage (MEB), les échantillons sont préparés dans une matrice de résine qui est ensuite laminée pour observer des coupes de particules. L’image obtenue avec un grossissement approprié permet d’analyser les détails de la structure morphologique au sein des particules de coke dans les différents échantillons sélectionnés. Il est possible aussi de faire une analyse élémentaire locale dans les échantillons grâce au spectromètre à dispersion d’énergie (EDS) couplé au MEB. Cependant, on ne peut obtenir qu’une analyse élémentaire qualitative par cette méthode.

5.3.3 Coke de pétrole utilisé

Le coke de pétrole disponible est le “syncrude fluid bed coke”. Le lot utilisé porte le No 81-17 et provient de l’installation d’Alberta d’où il a été obtenu en Mai 1981. L’échantillon est stocké depuis dans un baril conservé dans un entrepôt au sous sol de la faculté de génie. Deux catégories de poudres ont été utilisés. Elles seront désignées par coke fin ($dp < 0.425\text{ mm}$) et coke grossier ($0.841 \leq dp \leq 3.350\text{ mm}$). Les deux catégories de taille proviennent du même lot. La partie grosse a été séparée de la partie fine par tamisage. Les deux catégories: grosse et fine ont respectivement des tailles moyennes de 1.7 mm et 0.175 mm. La distribution de taille des deux catégories est rapportée en Annexe A4. L’analyse chimique détaillée du coke est rapportée dans l’annexe A3.

5.3.4 Procédure

Pour chacun des essais effectués, la torche plasma est démarrée avec un débit d'argon de 20 SLPM et un courant de 250 A. Le courant est ensuite réglé à 275 A pour les expériences faites à 11 kW et à 450 A pour les expériences faites à 22 kW. Un débit d'hélium de 10 SLPM est ensuite ajouté au gaz plasmagène. Toutes les expériences sont faites avec un débit total de gaz plasmagène (Ar/He) de 30 SLPM avec 33.3 % He.

Le gaz secondaire CO₂ est ensuite injecté à partir des pores d'injection à la sortie de la buse. La plupart des expériences ont été faites avec un débit de 10 SLPM de CO₂. Certaines expériences sont faites avec 20 SLPM de CO₂ et dans ce cas 10 SLPM sont injectés à partir du port d'injection à la sortie de la buse et 10 SLPM sont injectés à partir du port d'injection secondaire à la base du cône.

Une fois tous les débits de gaz réglés, l'alimenteur de poudre est démarré et la charge est effectuée à une vitesse d'environ 100 g/min pour le coke grossier et 60 g/min pour le coke fin. L'acquisition des températures, courant et voltage de la torche, ainsi que des différents débits est commencée après le démarrage de la torche. L'acquisition des analyses par le spectromètre de masse est commencée après le réglage du courant et débit de gaz plasmagène. Une synchronisation entre les temps d'acquisition MS et système d'acquisition Labview est faite lors de l'analyse des résultats qui sont présentés avec un temps de référence ($t = 0$) correspondant au démarrage de l'acquisition par le spectromètre de masse.

Après chaque expérience, le réacteur est complètement nettoyé, les poudres récupérées dans les différentes parties: réacteur, collecteur et filtre sont pesées. Un bilan de masse du solide, permet de déduire la quantité de coke consommée au cours de chaque expérience. La distribution de masse dans les différentes fractions est obtenue par tamisage. Des échantillons sont extraits des différentes fractions pour des analyses complémentaires: chimiques et au MEB.

5.4 Résultats

5.4.1 Conditions opératoires

La quantité de coke grossier disponible a limité le nombre d'expériences faites à 6. Pour le coke fin, c'est l'élutriation excessive observée qui a limité le nombre d'expériences à 4. Les

conditions opératoires de ces expériences sont résumées dans le tableau 5.7. Les expériences C_1 à C_6 se rapportent au coke de taille grossière ($0.841\text{mm} \leq d_p \leq 3.350\text{mm}$) et les expériences C_7 à C_{10} se rapportent au coke de taille fine ($d_p \leq 0.425\text{mm}$). La durée des expériences est comptabilisée à partir du début de chargement du réacteur en coke. Au cours de certaines expériences, le débit de CO_2 et/ou la puissance ont été variées, la durée ainsi que les débits et puissances utilisés pour chaque phase sont alors indiqués. La distribution de la masse de coke, en fin d'expériences, entre les différents éléments du système est détaillée dans le tableau 5.8.

Dans toutes les expériences sauf l'expérience C_6 , du coke de pétrole frais (non récupéré à partir des autres expériences) a été utilisé. Au cours de l'expérience C_6 , le réacteur a été chargé avec du coke constitué en grande partie (82.5 %) de coke récupéré après l'expérience C_5 où le coke de pétrole a subi une pyrolyse.

Les conditions thermodynamiques, thermiques et hydrodynamiques des différentes expériences sont rapportées respectivement dans les annexes A9 , A10 et A11. Les différentes expériences sont décrites en détail dans l'annexe A6. Les résultats de mesure de température dans le lit et les fractions molaires mesurées par le spectromètre de masse au cours des différentes expériences sont aussi rapportées dans l'annexe A6. Les principaux résultats sont résumés et analysés ci dessous , alors que les détails sont assemblés dans différentes annexes afin de faciliter la lecture du chapitre.

5.4.2 Température dans le lit

Au cours des différentes expériences, la température dans le lit a été mesurée par les trois thermocouples positionnés comme décrit ci-avant (voire figure 5.10). Les températures mesurées par les thermocouples T_1 et T_3 permettent d'estimer la température moyenne du lit alors que la température mesurée par le thermocouple T_2 , placé près de la paroi, est influencée par la température de celle-ci. La température enthalpique du plasma à la sortie de l'anode, ainsi que la température moyenne du lit ont aussi été calculées pour les différentes expériences (voire Annexe A10). Pour les puissances de ≈ 11 kW, la température enthalpique du plasma à la sortie de l'anode est dans la gamme 3000 - 3600 °C, alors que la température moyenne du lit est dans la gamme 400 - 700 °C . Pour les puissances ≈ 22 kW, la température enthalpique du plasma à la sortie de

TABLEAU 5.7 CONDITIONS OPÉRATOIRES AU COURS DES EXPÉRIENCES DE GAZÉIFICATION

Exp. label	gaz secondaire		charge (g)	Imoy (A)	Umoy (V)	P moy (kW)	P _{th} moy (kW)	durée (min)
	Nature	Débit (SLPM)						
C ₁	CO ₂	10	468	284	41	11.6	6.1	25
				446	46	20.6	11.8	7
C ₂	CO ₂	10	750	273	41.8	11.4	5.6	50
C ₃	CO ₂	10	750	271.2	42.6	11.5	5.5	66
		20*		441.4	50	22	11.2	8
C ₄	CO ₂	10	1 400	456.8	48.1	22	11.4	61
C ₅	N ₂	10	1 400	454.7	47.8	21.7	11.8	66
C ₆	CO ₂	10	1 473	455.6	48.7	22.2	11.9	89
C ₇	CO ₂	10	750	259.6	42	10.9	4.8	36
C ₈	CO ₂	10*	750	258	42.2	10.9	5.4	37
C ₉	CO ₂	10	1 500	444.6	49.1	21.9	11.1	34
C ₁₀	CO ₂	20*	1 500	451.4	48.3	21.8	11.7	32

* 10 SLPM de CO₂ sont injectés par le port d'injection n° 2 (figure 5.9).

TABLEAU 5.8 DISTRIBUTION DU COKE ENTRE LES DIFFÉRENTS ÉLÉMENTS: RÉACTEUR, COLLECTEUR ET FILTRE EN FIN D'EXPÉRIENCES.

Exp. label	Durée (min)	Charge initiale (g)	Masse recueillie dans le collecteur (g)	Masse recueillie sur le filtre (g)	Masse recueillie dans le réacteur (g)	% de charge élué (%)	Coke consommé (par différence) (g)
C ₁	32	468	60	--	358	13	50
C ₂	50	750	39	6	623	6	82
C ₃	74	750	50	7	585	7.6	108
C ₄	61	1 400	56	--	1 126	4	218
C ₅	66	1 400	86	--	1 209	6	105
C ₆	89	1 473	172	8	1 124	12	169
C ₇	36	750	288	--	373	38.4	89
C ₈	37	750	472	--	216	63	62
C ₉	34	1 500	963	12	409	65	116
C ₁₀	32	1 500	1 288	25	99	87.5	88

l'anode est dans la gamme 5700 - 6600 °C, alors que la température moyenne du lit est dans la gamme 500 - 1100 °C.

L'évolution de la température mesurée dans le lit au cours des expériences est présentée dans l'annexe A6. Dans certaines phases de l'expérience, un écart important entre les températures mesurées par les deux thermocouples T_1 et T_3 qui sont espacés de 10 mm verticalement et 15 mm radialement (voire figure 5.10) a été observé. Cet écart qui s'accompagne de montée de température est associé à des réactions exothermiques locales rapides ($C-O_2$) comme expliqué ci-après.

5.4.3 Attrition et élutriation

L'attrition du matériel au cours des expériences de gazéification du coke de pétrole a été évaluée par tamisage du matériel avant et après chaque expérience. La procédure a été décrite au chapitre 4. L'élutriation a été évaluée par le pourcentage massique de coke recueilli dans le collecteur et le filtre en fin d'expérience. Les résultats de l'étude de l'attrition et de l'élutriation au cours des expériences sont présentés en détail dans l'annexe A4.

Le pourcentage de charge élutriée au cours des expériences avec le coke grossier ($841\mu m \leq d_p \leq 3350\mu m$) varie entre 4 et 13% alors que pour le coke fin ($d_p \leq 425\mu m$) ce pourcentage est beaucoup plus important, il varie entre 38 et 88%. Le taux moyen d'attrition pour le coke grossier varie entre 0.13 et 0.8 % / min. Il est du même ordre de grandeur que celui mesuré lors de l'étude de l'attrition de l'alumine (chapitre 4). Une diminution importante de la taille moyenne du solide, entre 48 et 64 %, a été observée lors des expériences avec le coke grossier non pyrolysé (C_1 à C_5). Au cours de l'expérience C_6 , où le coke préalablement pyrolysé a été utilisé, une faible agglomération a été observée avec une augmentation légère de la taille moyenne du solide dans le réacteur de 8 %.

5.4.4 Taux de consommation du carbone

Le taux de consommation du carbone F_c a été calculé à partir des fractions molaires des gaz mesurées par l'MS à la sortie du réacteur. L'évolution de F_c au cours du temps pour les différentes expériences est présentée en Annexe A6. Le taux de consommation (g/s) varie au cours de chaque expérience. Il augmente avec l'augmentation de la température dans le lit et

varie entre 0.01 et 0.05 g/s. Le taux de consommation est plus important pour le coke grossier que pour le coke fin à cause des problèmes d'élutriation dans le cas du coke fin.

5.4.5 Taux spécifique moyen de gazéification

Le taux spécifique de gazéification, r , est défini dans la littérature par:

$$r = -\frac{1}{w} \frac{dw}{dt} \quad (5.22)$$

où w est la masse de solide dans le réacteur à l'instant t . Le taux spécifique de gazéification est aussi appelé réactivité. En général le taux spécifique de gazéification évolue avec le degré de conversion. En effet, la structure des particules, notamment la surface spécifique, varie au cours de la gazéification et entraîne donc une variation de la réactivité. Pour les expériences effectuées, un taux spécifique moyen de gazéification a été calculé à partir de la masse de coke totale consommée au cours de chaque expérience et à partir de la durée de celle-ci. La masse de coke consommée étant déduite du bilan de masse sur le coke. Les résultats sont présentés dans le tableau 5.9.

TABEAU 5.9 TAUX SPÉCIFIQUE DE GAZÉIFICATION MOYEN AU COURS DES EXPÉRIENCES.

Exp. label	gaz secondaire		Charge (g)	P _a moy (kW)	durée (min)	Coke consommé (g)	r (g/g/min) x 10 ⁵
	Nature	Débit (SLPM)					
C ₁	CO ₂	10	468	6.1	25	50	334
				11.8	7		
C ₂	CO ₂	10	750	5.6	50	82	219
C ₃	CO ₂	10	750	5.5	66	108	195
		20		11.2	8		
C ₄	CO ₂	10	1 400	11.4	61	218	255
C ₅	N ₂	10	1 400	11.8	66	105	114
C ₆	CO ₂	10	1 473	11.9	89	169	129
C ₇	CO ₂	10	750	4.8	36	89	330
C ₈	CO ₂	10	750	5.4	37	62	223
C ₉	CO ₂	10	1 500	11.1	34	116	227
C ₁₀	CO ₂	20	1 500	11.7	32	88	183

Le taux spécifique de gazéification varie entre 183 et 334 10⁻⁵ min⁻¹. Pour la pyrolyse seule (voire expérience C₅) le taux spécifique de gazéification est de 114 10⁻⁵ min⁻¹.

- Une comparaison entre les taux obtenus lors des expériences C₄, C₅ et C₆ montre que la contribution de la pyrolyse est importante, elle contribue pour 50% à la réactivité du coke. Ceci est en accord avec la littérature: la réactivité des solides à base de carbone tels que les résidus charbonniers et le coke augmente avec le % de matière volatile contenue dans le solide [WEN et coll., 1979].

- La comparaison des taux obtenus au cours des expériences C_2 et C_7 montre que r est plus important dans le cas du coke de granulométrie fine. Ceci est en accord avec le fait que pour les particules fines les limitations par diffusion de masse et de chaleur sont moins importantes. Cependant le taux de gazéification dans le cas du coke fin est considérablement réduit par l'élutriation. Les taux rapportés dans le tableau 5.9 sont basés sur la charge de coke initiale et tiennent donc compte de l'effet de l'élutriation.
- La comparaison entre les taux obtenus dans l'expérience C_7 où le CO_2 est injecté à la sortie de la buse (niveau d'injection N° 1 figure 5.9) et C_8 où le CO_2 est injecté par le niveau supérieur (niveau d'injection N°2 figure 5.9) montre que le niveau d'injection a une grande influence sur le taux de réaction obtenu (32 % de différence entre les deux cas). Ceci est dû à la contribution du CO_2 dissocié dans le plasma comme discuté ci après.
- La comparaison entre les taux obtenus au cours des expériences C_9 et C_{10} montre un effet inverse à celui normalement attendu lors de l'augmentation du débit de gaz réactif. Ceci s'explique par l'effet de l'élutriation. Les taux présentés dans le tableau 5.9 sont basés sur la quantité de coke initialement chargé dans le réacteur. Cependant la quantité de coke élutriée (voire tableau 5.8) est plus importante dans le cas de l'expérience C_{10} (débit $\text{CO}_2 = 20$ SLPM) en comparaison avec l'expérience C_9 (débit de $\text{CO}_2 = 10$ SLPM).

5.5 Analyse des résultats

5.5.1 Régime de contrôle

Dans le présent travail, il n'a pas été possible de conduire des expériences en thermogravimétrie pour déduire les mécanismes et les étapes contrôlantes dans la gamme de diamètre de particules, pression partielle de CO_2 et températures d'opération au cours de la gazéification dans le réacteur à lit soufflé par plasma. Les taux de gazéification mesurés sont donc analysés et interprétés à la lumière des études en TG faites par d'autres auteurs. Les résultats d'étude en TG faites par Turkdogan et publiés en trois articles [TUKDOGAN et coll, 1968], [TUKDOGAN et coll., 1969], [TUKDOGAN et coll., 1970] servent de base à l'interprétation et à la discussion des résultats obtenus au cours de la présente étude.

Les régimes de contrôle en fonction de la taille des particules déterminés par Turkdogan [TUKDOGAN et coll., 1968] sont rapportés dans le tableau 5.10.

TABEAU 5.10 DIAMÈTRES DE PARTICULE CRITIQUES POUR LES RÉGIMES DE CONTRÔLE EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE (d'après [TUKDOGAN et coll., 1968]).

Température (°C)	Diamètres critiques	
	Contrôle chimique	Contrôle par diffusion dans les pores
900	$d_p < 6 \text{ mm}$	$d_p > 20 \text{ mm}$
1 000	$d_p < 3 \text{ mm}$	$d_p > 10 \text{ mm}$
1 100	$d_p < 2 \text{ mm}$	$d_p > 0.7 \text{ mm}$

Les températures mesurées dans le lit au cours des expériences de gazéification sont dans la gamme 400 - 1100°C (voire annexe A6) et le calcul de la température moyenne du lit (voire annexe A10) prévoit une température moyenne de 500 - 600°C, pour les expériences faites à $P = 11 \text{ kW}$ et 1000 - 1100 °C pour les expériences faites à $P = 22 \text{ kW}$. Le diamètre des particules dans le lit est tel que $d_p \leq 0.425 \text{ mm}$ pour le coke fin ($\bar{d}_p = 0.175 \text{ mm}$) et $0.84 \leq d_p \leq 3.35 \text{ mm}$ pour le coke grossier ($\bar{d}_p = 1.7 \text{ mm}$). À la lumière des résultats présentés dans le tableau 5.10, on s'attend donc à ce que le régime de contrôle au cours des expériences de gazéification soit chimique. Ceci est confirmé par l'augmentation de la surface spécifique mesurée dans les différents échantillons recueillis en fin d'expériences (voire annexe A7) indiquant que la réaction a lieu dans tout le volume des particules et que la diffusion dans les pores n'est pas le régime limitant.

5.5.2 Ordre de réaction apparent

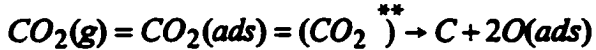
Pour déterminer l'ordre de réaction à partir des résultats des essais effectués, la méthode basée sur les taux de réaction initiaux décrite notamment dans la référence [FOGLER, 1992], a été suivie. Les détails sont données en annexe A8. L'ordre de réaction déterminé est:

$$n = 0.76 \pm 0.05$$

5.5.3 Mécanisme

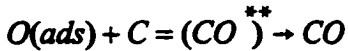
Dans le cas où la diffusion dans les pores n'est pas l'étape limitante, Turkdogan [TUKDOGAN et coll., 1970] postule un mécanisme réactionnel basé sur deux étapes réactionnelles en série:

(1) Adsorption puis dissociation du CO_2 à la surface du carbone (solide):



pour cette étape, la vitesse de réaction est telle que $r \propto P_{\text{CO}_2}$

(2) Formation du CO à la surface du carbone (solide):



pour cette étape, la vitesse de réaction est telle que $r \propto \sqrt{P_{\text{CO}_2}}$

(CO_2^{**}) et (CO^{**}) sont des complexes activés et P_{CO_2} est la pression partielle de CO_2 .

Les étapes réactionnelles en série sont analogues à des résistances en série et la vitesse de réaction $\text{CO}_2\text{-C}$ est contrôlée par l'étape qui a la plus grande résistance (étape la plus lente). D'après Turkdogan, l'étape (1) est l'étape qui contrôle la cinétique globale de la réaction C-CO_2 en présence d'une mixture CO-CO_2 à faible concentration de CO et l'étape (2) est l'étape contrôlante lorsque la concentration de CO est plus élevée.

Les ordres de réaction fractionnaires entre 0.5 et 1 sont interprétés à la lumière de ces deux étapes réactionnelles. Le cas limite $n = 1$ correspond à la dominance de l'étape (1) et l'autre extrême $n = 0.5$ correspond à la dominance de l'étape (2). D'après les résultats d'étude de Turkdogan [TUKDOGAN et coll., 1970], l'étape (2) contrôle pour une concentration de CO ($\frac{Y_{\text{CO}}}{Y_{\text{CO}} + Y_{\text{CO}_2}}$) supérieure à 10%. Dans le cas de nos expériences, la concentration de CO est toujours supérieure à 10% et atteint 80% au cours de certaines expériences. L'étape contrôlante serait donc l'étape (2) avec un ordre de réaction de 0.5. Cependant l'ordre de réaction déterminé est de 0.76 ce qui montre que l'étape (1) exerce aussi un contrôle même si la concentration de CO est supérieure à 10%. Ce résultat est expliqué en analysant le rôle du plasma.

5.5.4 Rôle du plasma

L'injection du CO_2 à la sortie de la buse a pour effet une dissociation partielle du CO_2 et production de l'oxygène moléculaire et atomique. Les calculs thermodynamiques (voire annexe A9) qui supposent un mixage parfait dans le plasma montrent que 60% du CO_2 est dissocié à 3000K, cependant les mesures des fractions molaires des gaz CO et CO_2 en début des expériences, avant le début de charge en coke, montrent que le taux de dissociation est de 10% (voire Annexe A6). Le rôle du plasma ne se limite donc pas au transfert d'énergie mais participe dans le mécanisme réactionnel. En effet la disponibilité d'oxygène atomique a une influence sur l'étape réactionnelle (1) postulée par Turkdogan [TUKDOGAN et coll., 1970]. Donc même, avec des concentrations importantes de CO (> 10%), l'existence d'une concentration d'oxygène atomique fait que les deux étapes (1) et (2) ont une influence partagée et justifie l'ordre de réaction apparent mesuré qui est de 0.76.

5.5.5 Performance

Au cours des expériences effectuées, le taux spécifique de gazéification varie entre $183 \cdot 10^{-5}$ et $334 \cdot 10^{-5}$ g/g/min (voire tableau 5.12). Ces taux sont élevés comparés à ceux mesurés par certains auteurs dans des conditions d'opération similaires: température, pression totale et pression partielle de CO_2 . Dans un lit fluidisé opéré à 900°C, Stubington [STUBINGTON et coll., 1985] obtient un taux maximal de $50 \cdot 10^{-5}$ g/g/min avec du coke ($d_p = 513 \mu\text{m}$) gazéifié dans un mélange gazeux CO_2/N_2 à 20% de CO_2 . Le taux mesuré en TG par Turkdogan [TUKDOGAN et coll., 1969] est de $90 \cdot 10^{-5}$ g/g/min pour des particules de 1 - 1.5 mm de résidus de charbon de noix de coco dans un effluent gazeux à 50 % CO_2 et à une température de 800°C. Le même auteur [TUKDOGAN et coll., 1970] rapporte dans le cas du coke ($d_p = 0.5 \text{ mm}$) un taux de $15 \cdot 10^{-5}$ g/g/min dans une atmosphère à 100% CO_2 et à une température de 800°C. Il montre que le taux de gazéification est très sensible à la température dans la zone 800°C - 1000°C. Le taux est multiplié par 10 pour une augmentation de température de 100°C. les taux de gazéification élevés obtenus dans le cas du réacteur à lit soufflé par plasma peuvent être attribués à plusieurs facteurs:

- La contribution du plasma dans le processus réactionnel par dissociation d'une fraction de CO_2 (10 %). L'oxygène moléculaire ou atomique obtenu a une influence sur le mécanisme réactionnel

de gazéification C- CO₂. Il contribue aussi à l'augmentation du taux de gazéification par combustion du carbone. Ceci est confirmé par des augmentations de température dans le lit mesurées au cours de certaines expériences et attribuées à la réaction de combustion exothermique C-O₂.

- Le coke de pétrole utilisé n'est pas complètement pyrolysé ce qui augmente sa réactivité.
- L'attrition caractéristique des lits soufflés est favorable à la réaction de gazéification.
- La température de réaction qui a une grande influence sur le taux de gazéification dans la gamme 800°C - 1000°C, reste non précisée. Les températures mesurées dans le lit sont dans la gamme 400 °C - 1100 °C.

5.6 Conclusion

L'objectif de démonstration d'utilisation du procédé à lit soufflé par plasma comme réacteur chimique solide/gaz a été atteint. La gazéification du coke de pétrole a été testée comme application. Les performances obtenues ont démontré l'efficacité du réacteur. Cette efficacité est attribuée aux caractéristiques typiques du lit soufflé par plasma.

- L'attrition qui est favorable à la gazéification.
- Le rôle du plasma comme facteur chimique participant aux processus réactionnels par dissociation de gaz et production de ions et radicaux a une influence sur les mécanismes conventionnels et peut contribuer à l'amélioration de la cinétique en milieux hétérogène solide/gaz.

L'efficacité énergétique du réacteur peut être améliorée par un meilleur contrôle de son hydrodynamique et la réduction des pertes thermiques.

L'élutriation importante observée dans le cas de particules de coke fin ($d_p < 0.425$ mm) diminue l'efficacité du réacteur. Une grande importance doit être accordée à ce phénomène dans le choix des applications. La taille de solide critique dépend des conditions hydrodynamiques d'opération (vitesse du gaz) et de la densité du solide.

CONCLUSION GÉNÉRALE

L'association des avantages multiples des lits fluidisés ou soufflés et des plasmas thermiques est très attrayante pour le développement d'une nouvelle génération de réacteurs chimiques. Les lits fluidisés ou soufflés sont caractérisés par un bon mélange des particules, des taux de transfert de chaleur et de masse élevés, une densité apparente de solide élevée et possibilité d'opération en continue. Les écoulements plasma sont composés d'espèces chimiques très réactives (ions, radicaux libres) et fournissent une source de chaleur à des températures élevées pour le chauffage du solide. Le développement des réacteurs à lits fluidisés ou soufflés par plasma est actuellement limité par le manque de connaissance des caractéristiques de base de ces réacteurs et par des problèmes techniques rapportés par les pionniers dans ce domaine tels l'agglomération, l'attrition et l'élutriation du solide. Le réacteur à lit soufflé par plasma offre les avantages spécifiques suivants:

- Le jet de plasma est confiné dans le lit de solide ce qui permet de limiter les pertes thermiques par rayonnement et convection.
- L'efficacité d'échange plasma - particules est élevée.
- La densité de puissance par unité de volume du réacteur est élevée. Ce qui permet la réalisation d'unités compactes.
- La recirculation vigoureuse du solide continuellement entraîné par le jet permet de réaliser des traitements nécessitant des temps de séjour importants.
- Le réacteur s'adapte facilement à un fonctionnement continu.
- L'apport d'énergie électrique est facilement contrôlable par variation du courant.

L'objectif final de cette étude était la réalisation d'un réacteur chimique à lit soufflé par plasma dans lequel certaines opérations telles que: traitement de minerai, gazéification et traitement de déchets solide pourraient être envisagées. Devant l'absence de tout critère de conception et de dimensionnement d'un tel réacteur et après les problèmes techniques rencontrés dus à la méconnaissance du mode de fonctionnement de ce réacteur et des paramètres qui contrôlent son hydrodynamique, il est apparu nécessaire de mener une étude de caractérisation afin de mieux comprendre les phénomènes impliqués et de voir les possibilités et les limites de ce type de

réacteur. La caractérisation comprend l'étude de l'hydrodynamique, du transfert de chaleur et de l'attrition dans le réacteur. À la dernière phase du projet, la gazéification du coke de pétrole par CO_2 a été explorée.

Bien que le lit soufflé soit connu depuis 1954, il n'existe pas encore de théorie unifiée et suffisante pour prédire le comportement hydrodynamique de ce réacteur. La littérature est riche en corrélations empiriques et semi-empiriques pour la prédiction des principales caractéristiques hydrodynamiques telles que la vitesse minimale de soufflage et la hauteur maximale de soufflage. Ces corrélations ne sont valables en général que dans la plage de paramètres testés, de plus les rares études qui se sont intéressées à l'influence de la température sur l'hydrodynamique du lit soufflé ont démontré que les corrélations établies à basses températures prédisent mal le comportement du réacteur à haute température.

La première application des lits soufflés par plasma relatée dans la littérature date de 1971. Cependant, rares sont les auteurs qui ont mentionné ou décrit le principe de fonctionnement d'un tel réacteur. Le réacteur à lit soufflé par plasma comparativement au lit soufflé standard est caractérisé par des vitesses de jet et des températures élevées à l'entrée du lit ce qui doit lui conférer un comportement distinct. Les études qui se sont intéressées à l'hydrodynamique du réacteur à lit soufflé par plasma sont très réduites. Les paramètres opératoires importants sont mal connus et une seule corrélation pour la vitesse minimale de soufflage a été établie avant le présent travail par Bamrim et Flamant [BAMRIM et coll., 1992].

L'étude de l'hydrodynamique du lit soufflé par plasma a été faite en plusieurs étapes. Dans un montage où l'observation du comportement du lit à travers une colonne en Pyrex ou en quartz était possible, il a été établi que la forme et la géométrie à la base du réacteur est un paramètre de design important qui influence la stabilité et l'existence de zones stagnantes dans le lit. Un montage expérimental adapté à l'étude paramétrique de l'hydrodynamique du réacteur a été mis au point par la suite. L'angle du cône a été inclus comme paramètre géométrique. Les paramètres opératoires qui ont été variés sont la taille des particules, le débit de gaz plasma et la puissance d'alimentation de la torche. Le comportement hydrodynamique du lit selon les conditions opératoires a été décrit avec précision. Une taille de poudre critique en bas de laquelle le lit soufflé par plasma est instable a été déterminée. Elle est de l'ordre de 0.450 mm pour le

solide utilisé (Alumine). Une procédure opératoire pour mesurer la vitesse minimale de soufflage et la hauteur de charge correspondante a été mise au point. Après une analyse dimensionnelle, les résultats de mesure ont été corrélés à l'aide de deux corrélations faisant intervenir les groupements adimensionnels établis d'après l'analyse dimensionnelle. Les conditions à l'entrée du lit: vitesse et température du jet paraissent être les paramètres qui contrôlent l'hydrodynamique du réacteur. Les corrélations établies montrent l'importance du nombre de Reynolds référé à la particule et aux conditions d'entrée du réacteur: température enthalpique du plasma et vitesse du jet.

La corrélation (2.17) qui exprime le nombre de Reynolds en fonction de la hauteur du lit et des autres paramètres liés au solide et au gaz permet de régler les conditions opératoires: débit de gaz et puissance pour maintenir une charge de solide déterminée à l'état soufflé.

$$Re_{pms} = \left(\frac{H}{d_p}\right)^{0.13} Ar^{1.44} \left(\frac{\rho_s - \rho_f}{\rho_f}\right)^{-0.4} \left(\frac{D_i}{d_p}\right)^3 (tg(a/2))^{-0.03} \quad (2.17)$$

La corrélation (2.18) qui exprime la hauteur du lit en fonction du nombre de Reynolds et des autres paramètres liés au solide et au gaz permet de calculer la charge maximale de solide qu'il est possible de maintenir à l'état soufflé sous des conditions opératoires fixées: débit de gaz et puissance.

$$\frac{H}{d_p} = (Re_{pms})^{0.52} Ar^{-0.15} \left(\frac{\rho_s - \rho_f}{\rho_f}\right)^{-0.01} \left(\frac{D_i}{d_p}\right)^2 (tg(a/2))^{0.005} \quad (2.18)$$

Une analyse des transferts de chaleur dans le lit soufflé par plasma a été faite. L'étude est basée sur les bilans d'énergie sur les différents éléments du système: torche, réacteur et solide granuleux. L'acquisition en continue du courant d'alimentation de la torche et de la chute de tension dans l'arc montre l'existence de fluctuations qui induisent des fluctuations dans les paramètres de contrôle de l'hydrodynamique du lit soufflé par plasma à savoir la vitesse du jet et la température enthalpique du plasma à la sortie de l'anode. Un modèle global pour l'estimation de la température moyenne du lit qu'on peut atteindre sous différentes conditions opératoires a été mis au point. Ce modèle qui tient compte des pertes thermiques du réacteur montre l'importance des pertes et explique le niveau de température bas mesuré au cours des expériences comparativement au niveau de température réalisable dans un réacteur adiabatique. Les pertes mesurées montrent l'importance des pertes radiatives, par la fontaine au dessus du lit. Ces pertes

représentent 60 % de l'énergie thermique injectée dans le lit. Les profils de température mesurés dans le lit au cours des expériences de bilan montrent que la partie haute du lit (le quart supérieur) est quasi isotherme alors que des gradients importants existent toujours à la base. Ces gradients sont expliqués qualitativement à la lumière des profils de vitesse de particules dans la zone annulaire établis par d'autres auteurs et par les pertes thermiques vers l'environnement.

Une comparaison entre la température moyenne du lit calculée par le modèle et la température moyenne algébrique des mesures effectuées dans le lit a permis de conclure que le modèle permet une bonne estimation de la température moyenne du lit et serait utile à des fins d'ingénierie.

Pour l'étude de l'attrition dans le réacteur à lit soufflé par plasma, des expériences ont été planifiées pour étudier l'influence de la puissance d'opération, de la taille des particules et de la durée du traitement sur le taux d'attrition et la quantité de fines produits. Les mesures ont montré que l'attrition est d'autant plus sévère que la puissance d'opération est élevée et la taille des particules est plus grande. Dans la gamme des conditions d'opération étudiée, les taux de fines produits varient de 4 à 33% de la charge solide dans le réacteur. La réduction du diamètre moyen de la poudre varie de 4 à 59% de la taille moyenne de la poudre initiale. La fragmentation des particules par chocs thermiques et chocs inter particules dans le jet contribue de manière importante à l'attrition dans le réacteur à puissance d'opération élevée. La mesure du facteur de forme des particules avant et après traitement dans le réacteur a montré une sphéroïdisation des particules. Ce phénomène étant dû à la fusion partielle de la surface des particules (plus important pour les particules de faible taille) et à la régularisation de la forme par friction inter particules dans l'anneau ainsi que par chocs inter particules dans le jet.

Après l'étude de caractérisation du réacteur, le montage pour l'étude des applications potentielles a été réalisé. La base du réacteur incluant l'entrée et la zone conique est en acier Inox avec un revêtement de zircone pour réduire les pertes thermiques vers l'environnement. L'angle de cône optimal déterminé d'après l'étude de l'hydrodynamique du réacteur est de 40°. Cette base comporte certaines options permettant l'injection de gaz secondaire à travers l'anode ou à travers un diffuseur à la base de la partie conique. L'application choisie est la gazéification du coke de pétrole par le dioxyde du carbone. Bien que de composition complexe, le coke de pétrole est

surtout vu comme une source de carbone. Il peut être aussi considéré comme un déchet à valoriser.

Deux catégories de taille de coke ont été utilisées au cours des expériences de gazéification. Une catégorie de taille fine ($d_p < 425\mu m$) et une catégorie de taille plus grosse ($0.841mm \leq d_p \leq 3.35mm$). Le taux spécifique de gazéification obtenu au cours des expériences varie entre $183 \cdot 10^{-5}$ et $334 \cdot 10^{-5}$ g/g/min. Ces taux sont de 3 à 6 fois supérieurs à ceux mesurés par certain auteurs dans les mêmes conditions d'opération: température, pression totale et pression partielle de CO_2 . Les taux élevés obtenus sont attribués à plusieurs facteurs:

- La contribution du plasma dans le processus réactionnel par dissociation d'une fraction de CO_2 (10 %). L'oxygène moléculaire ou atomique obtenu a une influence sur le mécanisme réactionnel de gazéification C- CO_2 . Il contribue aussi à l'augmentation du taux de gazéification par combustion du carbone. Ceci est confirmé par des augmentations de température dans le lit mesurées au cours de certaines expériences et attribuées à la réaction de combustion exothermique C- O_2 .
- Le coke de pétrole utilisé n'est pas complètement pyrolysé ce qui augmente sa réactivité.
- L'attrition caractéristique des lits soufflés est favorable à la réaction de gazéification.
- La température de réaction qui a une grande influence sur le taux de gazéification dans la gamme $800^\circ C - 1000^\circ C$, reste non précisée. Les températures mesurées dans le lit sont dans la gamme $400^\circ C - 1100^\circ C$.

L'analyse des résultats à la lumière des études faites en TG par d'autres auteurs a permis de conclure que :

- Le régime de contrôle au cours des expériences effectuées est chimique.
- L'ordre de réaction apparent mesuré qui est de 0.76 est dû à l'influence de l'oxygène généré par dissociation d'une fraction de CO_2 (10 %) dans le plasma et qui influence une des deux étapes réactionnelles en série impliquées dans le mécanisme réactionnel C- CO_2 .

L'objectif de démonstration d'utilisation du procédé à lit soufflé par plasma comme réacteur chimique solide/gaz a été atteint. Les performances obtenues au cours de la gazéification du coke de pétrole, testée comme application, ont démontré l'efficacité du réacteur. L'efficacité

énergétique du réacteur peut être améliorée par un meilleur contrôle de son hydrodynamique et la réduction des pertes thermiques.

L'élutriation importante observée dans le cas de particules de coke fin ($d_p < 425 \mu\text{m}$) diminue l'efficacité du réacteur. Une grande importance doit être accordée à ce phénomène dans le cas du choix des applications. La taille de solide critique dépend des conditions hydrodynamiques d'opération (vitesse du gaz) et de la densité du solide.

BIBLIOGRAPHIE

- ADAMS, R. L., WELTY, J. R. (1979) *A gas convective model of heat transfer in large particle fluidized bed*, A.I.Ch.E. J., vol 25, p. 395-405.
- ALLEN, T. (1981), *Particle size measurement*, London, 3^{ème} édition, Chapman and Hall, 678 p.
- AMOUROUX, J. , TALBOT, J. (1968), Ann. Chim., Paris (Masson,), vol.3, n° 3, p. 219-233
- ARNOULD, P. , AMOUROUX, J. (Juillet 1987) *Mise en oeuvre et analyse d'un procédé de fluidisation sous plasma*, Bull. Soc. Chem. Fr., France, n° 6, p. 985-995
- BAL, S., MUSIASKI, A., SWIERCZEK, R. (1971), Koks-Smola-Gaz, vol.5, p.123-135.
- BAMRIM, A., FLAMANT, G., VALLBONA, G. (Septembre 1992) *A correlation for the spouting transition in plasma spouted bed reactor*, Journal of High Temperature Chemical Processes, Colloque, Sup. n° 3, vol. 1, p. 27-34
- BIEDERMAN, D. L., MILES, A. J., VASTOLA, F. J., WALKER, P. L. Jr. (1976) *Carbon-carbon dioxide reactions: kinetics at low pressures and hydrogen inhibition*, Carbon, vol. 14, p. 351-356.
- BLAKELY, J. P., OVERHOLSER, L. G. (1965) *Oxydation of ATJ graphite by low concentrations of water vapor and carbon dioxide in helium*, Carbon, vol. 3, p. 269-275
- BMHB (1987), *Particle attrition : state-of-the-art review*, RFA, Trans Tech Publications, 107 p.
- BONET , C., VALLBONA, G., FOEX, M., DAGUENET, M., DUMARGUE, P. (1974), Rev. Int. des Htes. Temp. et Refract., vol..11, p. 11-24.
- BORODULYA, V. A., TEPLITSKY, YU. S., MARKEVITCH, I. I., YERYOMENKO, T. P. (1991) *Heat transfer between a surface and a fluidized bed: consideration of pressure and temperature effects*, Int. J. Heat Mass Transfer, vol. 34, p. 47-53.
- BOTTERILL, J. S. M. (1975) *Fluid-bed heat transfer*, New York, Academic Press Inc., 299 p.
- BOULOS, M. I. (Décembre 1991) *Thermal plasma processing*, I.E.E. transactions on plasma science, vol. 19, n° 6, p. 1087-1088.
- BOULOS, M. I. (Décembre 1992) *Radio frequency plasma developments, scale-up and industrial applications*, High Temp. Chem. Processes, vol. 1, p. 401-411

BOULOS, M. I., FAUCHAIS, P., PFENDER, E. (1994) *Thermal plasmas: fundamentals and applications*, New York, Plenum Press, 454 p.

BOULOS, M.I. (1996) *New frontiers in thermal plasma processing*, Pure & Appl. Chem., Great Britain, vol. 68, n° 5, p. 1007-1010.

BOURDIN, E., FAUCHAIS, P., BOULOS, M. (1983a) *Transient heat conduction under plasma conditions*, Int. J. Heat Mass Transfer, Great Britain, vol. 26, n° 4, p. 567-582.

BOURDIN, E., FAUCHAIS, P., VARDELLE, A. (1983b) *Les transferts de chaleur et de quantité de mouvement plasma-particules sans réactions chimiques*, Rev. Gén. Therm. Fr., Paris, n° 253, p. 47-69.

BRIDGWATER, J. (1985) *Spouted beds*, dans *Fluidization*, London, 2^{ème} édition, J. Davidson, R. Clift et D. Harrison, Eds., Academic Press, p. 201-224.

CHEN, J. C., CHEN, K. L. (1981) *Analysis of simultaneous radiative and conductive heat transfer in fluidized beds*, Chem. Engng Commun., vol. 9, p. 255-271.

CHEN, X., LEE, Y.C., PFENDER, E. (1983 a) *The importance of Knudsen and evaporation effects, on modeling in thermal plasma processing*, ISPC-6, Montréal, vol. 1, p. 51-58.

CHEN, X., PFENDER, E. (1983 b) *Effect of the Knudsen number on heat transfer to a particle immersed into thermal plasma*, Plasma Chem. Plasma Proc., vol. 3, n° 1, p. 97-113.

CHEN, X., PFENDER, E. (1983 c) *Behavior of small particles in a thermal plasma flow*, Plasma Chem. Plasma Proc., vol. 3, n° 3, p. 351-366

DAVIDSON, J. F., HARRISON, D. (1963) *Fluidized Particles*, Cambridge University Press, Cambridge, 155 p.

DAVIDSON, J. F., CLIFT, R., HARRISON, D. (1985) *Fluidization*, London, 2^{ème} édition, Academic Press, 733 p.

DAY, J. Y. (1990) *The fountain height and particle circulation in rate in a spouted bed*, Chem. Eng. Science, vol.45, n° 9, p. 2987-2990.

DECKER, N. A., GLICKSMAN, L. R. (1983) *Heat transfer in large particle fluidized beds*, Int. J. Heat Mass Transfer, vol. 26, p. 1307-1320.

DOELLING, M. K., NASH, R. A. (1992), Pharmaceutical research, vol. 9, n° 11, p. 1493-1501

DUTTA, S., WEN, C. Y., BELT, R. J. (1977) *Reactivity of coal and char in carbon dioxide atmospheres*, Ind. Eng. Chem. Process Des. Div., vol. 16, n° 1, p. 20-30

EL-NAAS, M. H. (1996) *Synthesis of calcium carbide in a plasma spout fluid bed reactor*, Thèses de doctorat, Ph.D., Université McGill, Québec, Canada.

EPSTEIN, N., KISHAN, B. M. (1974) *Spouted beds*, Academic Press Inc., New York, 304 p.

EPSTEIN, N., GRACE, J. (1984) *Spouting of particulate solids*, dans *Handbook of Powder Science and Technology*, New York, M. E. Elfayed et L. Otten, Eds., Van Norstrand Reinhold, p. 507-536.

ESSOLTANI, A. (1991) *Étude du rayonnement émis par un plasma d'argon en présence de vapeurs métalliques*, Thèse de doctorat, Ph.D., Université de Sherbrooke, Québec.

FERRETTI, M. (1982) *La valorisation du charbon*, Paris, Techniques et documentation Lavoisier, 317 p.

FISZDON, J. K. (1979) *Melting of powder grains in a plasma flame*, Int. J. of Heat and Mass Transfer, vol. 22, p. 749-761.

FLAMANT, G. (1990 a) *Hydrodynamics and heat transfer in a plasma spouted bed reactor*, Plasma Chemistry and Plasma Processing, vol. 10, n° 1, p. 71-85.

FLAMANT, G., CHRAIBI, M. A., VALLBONA, G., BERTRAND, C. (1990 b) *Decarbonation and attrition of calcite in a plasma spouted bed reactor*, Sup. Journal de Physique, Colloque C5, Sup. n° 18, vol. 51, p. 27-34.

FLAMANT, G., BAMRIM, A., BADIE, J. M., LECADET, J. (Septembre 1992) *Plasma beneficiation of lead-rich dusts*, Journal of High Temperature Chemical Processes, Colloque, Sup. n°3, vol. 1, p. 239-246.

FLAMANT, G., LU, J. D., VARIOT, B. (1993) *Towards a generalized model for vertical walls to gas-solid fluidized beds heat transfer -II. Radiative transfer and temperature effects*, Chemical Engineering Science, Great Britain, vol. 48, n° 13, p. 2493-2503.

FLAMANT, G. (1994) *Plasma fluidized and spouted bed reactors: an overview*, Pure & Appl. Chem., Great Britain, vol. 66, n° 6, p. 1231-1238

FOGLER, H. S. (1992) *Elements of chemical reaction engineering*, USA, 2^{ème} édition, Printice-Hall Inc., 838 p.

FUCHS, W., YAVORSKY, P. M. (1975) *Gasification of Hydrane char in reaction with carbon dioxide and steam*, Preprt. Amer. Chem. Soc., Div. Fuel Chem., vol. 20, n° 3, p. 115-133

- GADSBY, J., LONG, F. J., SLEIGHTHOLM, P., SYKES, K. W. (1948) *The mechanism of the carbone dioxide-carbone reaction*, Proc. Roy. Soc., London, vol. A193, p. 357-376.
- GELDART, D. (1973) *Types of gas fluidization*, Powder Technology, vol. 7, p. 285-292.
- GHOSH, B. (Janvier 1965) *A study on the spouted bed, Part I - A theoretical analysis*, Indian Chemical Engineer, p. 16-19.
- GISHLER, P. E., MATHUR, K. B. (1957) *Method of contacting solid particles with fluids*, US patent n° 2,786,280.
- GOLDBERGER, W.M., OXLEY, J.H. (1963) *Quenching the plasma réaction by means of the fluidized bed*, A.I.Ch.E. Journal, vol. 9, n° 6, p. 778-782.
- GOLDBERGER, W.M., (1965), Chemical Engineering Processes Symp. Series, vol. 62, n° 62, p. 42-46.
- GORSHTAIN, A. E., MUKHLENOV, I. P. (1964) *Hydraulic resistance of a fluidized bed in a cyclon without a grate. Critical gas rate corresponding to the beginning of jet formation.*, Zh. Prikl. khim., Leningrad, vol. 37, n° 9, p. 1887-1893.
- GRACE, J. R., MATHUR, K. B. (Octobre 1978) *Height and structure of the fountain region above spouted beds*, Can. J. Chem. Eng., vol. 56, p. 533-537
- GUPTA, S. N., CHAUBE, R. B., UPADHYAY, S. N. (1974) *Fluid-particle heat transfer in fixed and fluidized beds*, Chemical Engineering Science, Great Britain, vol. 29, p. 839-843.
- HE, Y. L., LIM, C. J., GRACE, J. R. (1997) *Scale-up studies of spouted beds*, Chem. Engng. Sci., Great Britain, vol. 52, n° 2, p. 329-339
- HUMBERT, P., MORVAN, D., AMOUROUX, J. (1992) *modelisation of heat and mass transfer between a particle and a thermal plasma*, High Temp. Chem. Process, vol. 1, p. 58-76.
- INCROPERA , F. P., DEWITT, D. P. (1990) *Fundamentals of heat and mass transfer*, New York, 3^{ème} édition, John Wiley & sons, 950 p.
- JOHNSON, J. L. (1979) *Kinetics of coal gasification*, New York, John Wiley & Sons, 324 p.
- JUREWICZ, J., PROULX, P., BOULOS, M. I. *The plasma spouted bed reactor*, ISPC-7, Eindhoven, vol. 1, p. 243-248
- KAWAMURA, H., OKUBO, T., KUSAKABE, K., MOROOKA, S. (1990), Journal of Materials Science Letters, vol. 9, p. 1033-1035.

KEILMAN, L. M. (1983) *The measurement of coal char and coke reactivity in a fixed bed reactor*, Thèse de maitrise, Purdue University, Indiana USA.

KLASSEN, J., GISHLER, P. E. (1958) *Heat transfer from column wall to bed in spouted, fluidized and packed systems*, Can. J. Chem. Eng., vol. 36, p. 12-18

KMIEC, A. (1977) *Expansion of solid-gas spouted beds.*, Chem. Eng. J., vol. 13, p. 143-147.

KOJIMA, T., MATSUKATA, M., ARAO, M., NAKAMURA, N., MITSUYOSHI, Y. (1991), Sup. Journal de Physique II, Col. C2, vol. 1, p. 429-436.

KONO, H. (1981) *Attrition rates of relatively coarse solid particles in various types of fluidized beds*, A.I.Ch.E Symp. Ser., vol. 77, n° 205, p. 96-106

KRICORIAN, O. H. (1972) *Atomic Energy Commission Report No. UCID-16587*, Springfield Va., National Technique Information Service.

KRZYWANSKI, R.S., EPSTEIN, N., BOEN, B.D. (1992) *Multi-dimensional model of a spouted bed*, Can. J. Chem. Eng., vol. 70, p. 858-872.

KUNII, D., LEVENSPIEL, O. (1991) *A general equation for the heat-transfer coefficient at wall surfaces of gas/solid contactors*, Ind. Engng. Chem. Res., vol. 30, p. 136-141.

LEE, Y. C., CHYOU, Y. P., PFENDER, E. (1985) *Particle dynamics and particle heat and mass transfer in thermal plasmas. Part. II Particle heat and mass transfer in thermal plasmas*, Plasma Chem. Plasma Proc., vol.5, n° 4, p. 391-414.

LEUENBERGER, J. L., MOHAMMEDI, M., FRANCKE, E., AMOUROUX, J. (Octobre 1995) *Hydrocracking of n-Hexadecane in plasma-Spouted bed reactor. Role of catalytic proprieties of the fluidized bed*, High Temp. Chem. Processes, vol. 4, p. 143-157.

LEVENSPIEL, O. (1972) *Chemical reaction engineering*, New York, John Wiley & Sons, 578 p.

LEWIS, W. K., GILLILAND, E. R., McBRIDE, G. T. (1949) *Gasification of carbon by carbon dioxyde in fluidized powder bed*, Ind. Eng. Chem., vol. 41, n° 6, p. 1213-1226.

LITTMAN, H., SILVA, D. E. (1971) *Gas-particle heat transfer coefficients in packed beds at low Reynolds number, heat transfer 1970, Paris - Versailles*, Elsevier, Amsterdam, vol.7, CT 1.4

LIU, L. X., LITSTER, J. D. (1991) *The effect of particle shape on the spouting properties of non spherical particles*, Powder Technology, vol. 66, p. 59-67.

LU, J. D., FLAMANT, G. , SNABRE, P. (1993) *Towards a generalized model for vertical Walls to gas-solid fluidized beds heat transfer -I. Particle convection and gas convection*, Chemical Engineering Science, Great Britain, vol. 48, n° 13, p. 2479-2492.

LUIKOV, A. V., SHASHKOV, A. G., VASILIEV, L. L., FRAIMAN, YU. E. (1968) *Thermal conductivity of porous systems*, Int. J. Heat Mass Transfer, Great Britain, vol. 11, p. 117-140.

MALEK, M. A., LU, B. C. Y. (1964) *Heat transfer in spouted beds*, Can. J. Chem. Eng., vol. 42, p. 14-20

MALEK, M. A., LU, B. C. Y. (1965) *Pressure drop and spoutable bed height in spouted beds*, Ind. Eng. Chem. Process Des. Dev., vol.4, n° 1, p. 123-128

MARTIN, A. E (1981) *Chemistry of coal utilisation*, New York, Second Supplementary Volume, Wiley-Interscience Publication, 2374 p.

MARTIN, S. W. (1960) *Petroleum coke dans Handbook of petroleum products*, New York, 1^{re} édition, Virgil B. Guthrie Ed., Section 14, p. 1-24

MATHUR, A., SAXENA, S. C. (1987) *Total and radiative heat transfer to an immersed surface in a gas-fluidized bed*, A.I.Ch.E. J., vol. 33, p. 1124-1135.

MATHUR, K. B., GISHLER, P. E. (1955) *A technique for contacting gases with solid particles*, A.I.Ch.E. J., vol. 1, p. 157-164.

MAZZA ,G. D., BARETTO, G. F. (1988) *The gas contribution to heat transfer between fluidized beds of large particles and immersed surfaces*, Int. J. Heat Mass Transfer, vol. 31, p. 603-614.

McNAB, G. S., BRIDGWATER, J. (1977) *Spouted beds - Estimation of spouted pressure drop and the particle size for deepest beds*, Proc. European Congress on Particle Technology, Nuremberg, p. 858-872.

MERRY, J. M. D. (1975) *Penetration of vertical jets into fluidized beds*, A.I.Ch.E. J., vol. 21, p. 507-510.

MICKLEY, H. S., FAIRBANKS, D. F. (1955) *Mechanism of heat transfer to fluidized beds*, A.I.Ch.E. J., vol 2, p. 374-384.

MING-YUAN, K. (1984) *Coal char gasification kinetics in a jet-fluidized bed*, Thèse Ph.D, Purdue University, Indiana USA..

MOLERUS, O. (1993) *Arguments on heat transfer in gas fluidized beds*, Chemical Engineering Science, Great Britain, vol. 48, n° 4, p. 761-770.

- MONTGOMERY, W.J. (1978) *Standard laboratory test methods for coal and coke dans Analytical methods for coal and coal products*, New York, 1^{ère} édition, C. Karr, 2, 580 p.
- MOUSTAGHIMI, J., PFENDER, E. (1984) *effects of metallic vapor on the properties of an argon arc plasma*, Plasma Chem. plasma proc., vol. 4, p. 199-217
- MULCAHY, M. F. R., SMITH, I. W. (1969) *Kinetics of combustion of pulverized fuel: A review of theory and experiment*, Review of Pure and Applied Chemistry, vol. 19, p. 81-108.
- MUNSEN, B. R., YOUNG, D. F., OKIISHI, T. H. (1994) *Fundamentals of fluid mechanics*, New York, 2^{ème} édition, John Wiley & Sons Inc., 893 p.
- MUNZ, R. J., MERSEREAU, O.S. (1990) *A plasma spout-fluid bed for the recovery of vanadium from vanadium ore*, Chemical Engineering Science, Great Britain, vol. 45, n° 8, p. 2489-2495
- NIKRAVECH, N., OUTIFA, L., AMOUROUX, J. (1990), Sup. Journal de Physique, Colloque C5, Sup. n° 18, vol. 51, p.91-99.
- OKUBO, T., KAWAMURA, H., KUSAKABE, K., MOROOKA, S. (1990), J. Am. Ceram. Soc., vol. 73, n° 5, p. 1150-1152.
- OLZAR, M., SAN JOSÉ, M. J., AGUAYO, A. T., ARANDES, J. M., BILBAO, J. (1992) *Stable opération conditions for gas-solid contact regimes in conical spouted beds*, Ind. Eng. Chem. Res., vol. 31, p. 1784-1792.
- OLZAR, M., SAN JOSÉ, M. J., AGUAYO, A.T., ARTANDES J.M., BILBAO, J. (1993) *Pressure drop in conical spouted beds*, The Chem. Eng. J., vol. 51, p. 53-60.
- OMEGA (1992) *The temperature handbook*, USA, Omega Engineering Inc., vol.28, 1300 p.
- PATEYRON, B. (Juillet 1987) *Contribution à la réalisation et à la modélisation de réacteurs plasmas soufflés ou transférés appliqués à la métallurgie extractive et à la production de poudres ultrafines métalliques ou céramiques*, Thèse de doctorat, Ès Sciences physiques, Université de Limoges, Limoges, France.
- PERNIN, J.F., MOTALEBI, C., LEUENBERGER, J. L., CAVADIAS, S. , AMOUROUX, J. (1992), Journal of High temperature Chemical Processes, Sup. n° 3, vol. 1, p. 87-93
- PFENDER, E. (1987) *Thermal plasmas, International summer school on plasma chemistry*, Japon, Pfender E., 1, 703 p.
- PRADEEP, K. A. (1988) *Transport phenomena in multi-particle systems-II. Particle-fluid heat and mass transfer*, Chemical Engineering Science, Great Britain, vol.43, n° 9, p. 2501-2510
- RAIZER, P. Y. (1991) *Gas discharge physics*, Berlin, Springer-Verlag, 1, 450 p.

ROWE, P. N., CLAXTON, K. T. (1965) *Heat and mass transfer from a single sphere to fluid flowing through an array*, Trans. Inst. Chem. Eng., vol. 43, T321.

SAXENA, S. C., SRIVASTAVA, K. K., VADIVE, R. (1989) *Experimental techniques for the measurement of radiative and total heat transfer in gas fluidized beds: a review*, Exp. Thermal Fluid Sci., vol. 2, p. 350-364.

SAYEGH, N. N., GAUVIN, W. H. (1979a) *Numerical analysis of variable property heat transfer to a single sphere in high temperature surroundings*, A.I.Ch.E. J., vol. 25, p. 522-530.

SAYEGH, N. N., GAUVIN, W. H. (1979b) *Heat transfer to a stationary sphere in a plasma flame*, A.I.Ch.E. J., vol. 25, p. 1057-1064.

SMOOT, L. D., SMITH, J. P. (1985) *Coal combustion and gasification*, New York, Plenum Press, 443 p.

STRANGE, J. F., WALKER, P. L. Jr. (1976) *Carbon-carbon dioxide reaction: Langmuir - Hinshelwood kinetics at intermediate pressures*, Carbon, vol. 14, p. 345-350.

STULL, D. R., PROPHET, H. (1971) *JANAF Thermochemical Tables*, Washinton D.C., 2^{ème} Édition, U.S. Government Printing Office, 1141 p.

SZEKLEY, J., EVANS, J. W., SOHN, H. Y. (1976) *Gas-solid reactions*, New York, Academic Press, 432 p.

THOMAS, W. J. (1977) *Effet of oxydation on the pore structure of some graphitized carbon blacks*, Carbon, vol. 3, p.435-441

TSUKADA, M., GOTO, K., YAMAMOTO, R. H., HORIO, M. (1995) *Metal powder granulation in a plasma-spouted/fluidized bed*, Powder Technology, vol. 82, p. 347-353.

TSVICK, M. Z., NABIEV, M. N., MERENKOV, K. V., VYZGO, V. S. (1967) *The velocity for external spouting in then combined process for production of granulated fertilizer*, Uzb. Khim. Zh., vol. 11, n° 2, p. 50-56.

TURKDOGAN, E. T., KOUMP, V., VINTERS, J. V., PERZAK, T. F. (1968) *Rate of oxydation of graphite in carbon dioxide*, Carbon, vol. 6, p. 467-484

TURKDOGAN, E. T., VINTERS, J. V., (1969) *Kinetics of oxydation of graphite and charcoal in carbon dioxide*, Carbon, vol. 7, p. 101-117

TURKDOGAN, E. T., VINTERS, J. V. (1970) *Effect of carbon monoxyde on the rate of oxydation of charcoal, graphite and coke in carbon dioxide*, Carbon, vol. 8, p. 39-53

TYLER , R. J., SMITH, I. W. (1975) *Reactivity of petroleum coke to carbon dioxide between 1030 and 1180 K*, Fuel, vol. 54, p. 99-104

VARDELLE, M., VARDELLE, A., FAUCHAIS, P., BOULOS, M. (1983) *Plasma-particle momentum and heat transfer: modeling and measurements*, A.I.Ch.E. J., vol. 29, n° 2, p. 236-243.

VARDELLE, A. (1987) *Étude numérique des transferts de chaleur, de quantité de mouvement et de masse entre un plasma d'arc à la pression atmosphérique et des particules solides*, Thèse de doctorat, Ès Sciences physiques, Université de Limoges, Limoges, France.

VARDELLE, A., VARDELLE, M., FAUCHAIS, P. (1986) *Les transferts de quantité de mouvement et de chaleur plasma particules solides dans un plasma d'arc en extinction*, Rev. Int. Hautes Tempér. Réfract. France, n° 23, p. 69-85.

WAKAO, N., KAGUEI, S. (1982) *Heat and mass transfer in packed beds*, New York, Gordon and Breach Science publishers Inc., 363 p.

WALKER, P. L. Jr., FOREST, R. J. Jr., WRIGHT, C. C. (1953) *Surface area studies of carbon-carbon dioxide reaction*, Ind. Eng. Chem., vol. 45, n° 8, p. 1703-1710

WALKER, P. L. Jr., RUSINKO, F., AUSTIN, L. G. (1959) *Gas reactions of carbon* dans *Advances in catalysis*, New York, D.D. Eley Ed., Academic Press Inc., vol. 11, 384 p.

WALKER, P. L. Jr., SHELEF, M., ANDERSON, R. T. (1968) *Catalysis of carbon gasification*, Chem. Phys. Carbon, vol. 4, p. 287-301

WEN, C. Y., STANLEY, L. E. (1979) *Coal conversion technology*, Massachusetts, 1^{re} édition, Addison-Westley, 586 p.

WU, S. W. M., LIM, C. J., EPSTEIN, N. (1987) *Hydrodynamics of spouted beds at elevated temperatures*, Chem. Eng. Comm., US, vol. 62, p. 251-268.

YE, B., LIM, C. J., GRACE, J. R. (Octobre 1992) *Hydrodynamics of spouted and spout-Fluidized beds at high temperature*, The Can. J. Chem. Eng., vol. 70, p.840-847.

YOSHIDA, K., UENO, T., KUNII, D. (1974) *Mechanism of bed wall heat transfer in a fluidized bed at high temperatures*, Chem. Engng. Sci., vol. 29, p. 77-82

YOUNG, R. M., PFENDER, E. (1987) *Nusselt number correlations for heat transfer to small spheres in thermal plasma flows*, Plasma Chem. Plasma Proc., vol. 7, n° 2, p. 211-228.

APPENDICE

Soit la réaction C - CO₂



Taux de conversion de CO₂

Le taux de conversion X_{CO_2} est défini par:

$$X_{CO_2} = \frac{\text{Nombre de moles de CO}_2 \text{ consommées}}{\text{Nombre de moles de CO}_2 \text{ initiales}} \quad (2)$$

Il est calculé à partir des fractions molaires, mesurées par le spectromètre de masse à la sortie du réacteur, et des débits volumiques des gaz injectés à l'entrée. X_{CO_2} peut être exprimé en fonction de la fraction molaire de CO₂ à la sortie du réacteur (expression $X1_{CO_2}$), ou à partir de la fraction molaire de CO mesurée à la sortie (expression $X2_{CO_2}$). Pour le calcul des expressions de $X1_{CO_2}$ et de $X2_{CO_2}$, les relations suivantes sont utilisées:

$$\dot{n}_{CO_2 \text{ consommé}} = \frac{1}{2} \dot{n}_{CO \text{ formé}} \quad (3)$$

$$\dot{n}_{CO_2 \text{ consommé}} = \dot{n}_{iCO_2} - \dot{n}_{CO_2} \quad (4)$$

où \dot{n}_{iCO_2} et \dot{n}_{CO_2} sont respectivement le débit molaire de CO₂ dans le gaz à l'entrée du réacteur et à la sortie du réacteur. $\dot{n}_{CO \text{ formé}}$ est le débit molaire du gaz CO à la sortie du réacteur.

$X1_{CO_2}$ et $X2_{CO_2}$ sont définis à partir des deux expressions:

$$X1_{CO_2} = \frac{\dot{n}_{iCO_2} - \dot{n}_{CO_2}}{\dot{n}_{iCO_2}} = 1 - \frac{\dot{n}_{CO_2}}{\dot{n}_{iCO_2}} \quad (5)$$

$$X2_{CO_2} = \frac{\frac{1}{2} \dot{n}_{CO}}{\dot{n}_{iCO_2}} \quad (6)$$

Les débits molaires à la sortie du réacteur peuvent être reliés aux fractions molaires et au débit molaire d'argon.

On a:

$$Y_{CO_2} = \frac{\dot{n}_{CO_2}}{\dot{n}_T}, Y_{Ar} = \frac{\dot{n}_{Ar}}{\dot{n}_T} \text{ d'où } \dot{n}_T = \frac{\dot{n}_{Ar}}{Y_{Ar}} \text{ et } \dot{n}_{CO_2} = Y_{CO_2} \cdot \dot{n}_T = \frac{Y_{CO_2}}{Y_{Ar}} \cdot \dot{n}_{Ar}$$

De la même manière on a: $\dot{n}_{CO} = Y_{CO} \cdot \dot{n}_T = \frac{Y_{CO}}{Y_{Ar}} \cdot \dot{n}_{Ar}$

où \dot{n}_T est le débit molaire total du gaz à la sortie du réacteur.

D'autre part, $\dot{n}_{i_{CO2}} = \frac{Y_{i_{CO2}}}{Y_{i_{Ar}}} \cdot \dot{n}_{i_{Ar}}$

La quantité de gaz inerte argon est conservée entre l'entrée et la sortie d'où: $\dot{n}_{Ar} = \dot{n}_{i_{Ar}}$.

Et on obtient les expressions de $X1_{CO2}$ et $X2_{CO2}$:

$$X1_{CO2} = 1 - \frac{Y_{CO2}}{Y_{Ar}} \frac{Y_{i_{Ar}}}{Y_{i_{CO2}}} \quad (7)$$

$$X2_{CO2} = \frac{\frac{1}{2} \dot{n}_{CO}}{\dot{n}_{i_{CO2}}} = \frac{1}{2} \frac{Y_{CO}}{Y_{Ar}} \frac{Y_{i_{Ar}}}{Y_{i_{CO2}}} \quad (8)$$

Dans ces expressions $Y_{i_{gaz}}$ représente la fraction molaire du gaz en indice à l'entrée et Y_{gaz} représente la fraction molaire du gaz en indice à la sortie.

Taux de consommation du carbone

Les expressions du taux de consommation du carbone F_{c1} et F_{c2} sont obtenues à partir des deux expressions de X_{CO2} ($X1_{CO2}$ et $X2_{CO2}$).

On a :

$$F_c = 12 \dot{n}_{CO2 \text{ consommé}} = 12 X_{CO2} \cdot \dot{n}_{i_{CO2}} = 12 X_{CO2} \cdot \dot{n}_T \cdot Y_{i_{CO2}} \quad (9)$$

où \dot{n}_T est le débit molaire total du gaz à l'entrée. Pour obtenir les expressions de F_{c1} et F_{c2} , il suffit de remplacer X_{CO2} dans l'expression ci-dessus par $X1_{CO2}$ et $X2_{CO2}$. On obtient :

$$F_{c1} = 12 \dot{n}_T \left[\frac{(Y_{i_{CO2}} - Y_{CO2})}{(1 + Y_{CO2})} \right] \quad (10)$$

$$F_{c2} = 12 \dot{n}_T \frac{Y_{CO}}{(2 - Y_{CO})} \quad (11)$$

Calcul de la masse d'hydrogène dégagée au cours de l'expérience

Le débit massique de l'hydrogène dégagé peut être calculée par:

$$\dot{m}_{H2} (g) = 2 \dot{n}_{H2} = 2 Y_{H2} \dot{n}_T \quad (12)$$

où \dot{n}_{H2} est le débit molaire de H_2 et \dot{n}_T est le débit molaire totale à la sortie du réacteur.

\dot{n}_T peut être calculé à partir du flux molaire d'Ar \dot{n}_{Ar} et de la fraction molaire d'Ar à la sortie du réacteur Y_{Ar} . Soit $\dot{n}_T = \frac{\dot{n}_{Ar}}{Y_{Ar}}$

Comme l'argon est conservé entre l'entrée et la sortie du réacteur, on a: $\dot{n}_{Ar} = \dot{n}_{i,Ar}$. Le débit molaire de l'argon à l'entrée du réacteur est calculé à partir du débit volumique mesuré par les rotamètres $\dot{V}_{i,Ar}$, de la masse volumique de l'argon dans les conditions standard ρ_{Ar}^0 et de la masse atomique de l'Argon M_{Ar} .

$\dot{n}_{i,Ar} = \frac{\rho_{Ar}^0 \dot{V}_{i,Ar}}{M_{Ar}}$. On obtient alors pour le débit massique d'hydrogène dégagé:

$\dot{m}_{H2}(g) = 2Y_{H2} \frac{\dot{n}_{i,Ar}}{Y_{Ar}}$. La masse totale d'hydrogène dégagée est alors calculée en intégrant entre le début ($t = t_i$) et la fin de l'expérience ($t = t_f$). Soit:

$$m_{H2}(g) = 2 \frac{\rho_{Ar}^0 \dot{V}_{i,Ar}}{M_{Ar}} \int_{t_i}^{t_f} \left(\frac{Y_{H2}}{Y_{Ar}} \right) dt \quad (13)$$

Calcul du taux de conversion à partir des analyses chimiques

Soient mc_i et mc respectivement les masses de carbone contenues dans l'échantillon non gazéifié (initiale) et dans l'échantillon gazéifié (après expérience). Le taux de conversion ou taux de consommation du carbone dans l'échantillon peut être défini par:

$$X_C = \frac{mc_i - mc}{mc_i} = 1 - \frac{mc}{mc_i} \quad (14)$$

Soit m_i et m respectivement la masse totale de l'échantillon (considéré constitué de carbone et de cendres) avant et après gazéification. En divisant dans le rapport $\frac{mc}{mc_i}$ en bas et en haut par m , on obtient:

$$X_C = \frac{mc_i - mc}{mc_i} = 1 - \frac{\frac{mc}{m}}{\frac{mc_i}{m}} = 1 - \frac{\frac{mc}{m}}{\frac{mc_i}{m_i} \frac{m_i}{m}} \quad (15)$$

Sachant que $\frac{mc}{m} = Ym_c$ pourcentage massique du carbone dans l'échantillon gazéifié et

$\frac{mc_i}{m_i} = Ym_{i,c}$ pourcentage massique de carbone dans l'échantillon non gazéifié, on a:

$$X_C = 1 - \frac{Ym_c}{Ym_{i,c} \frac{m_i}{m}} = 1 - \frac{Ym_c}{Ym_{i,c}} \frac{m}{m_i} \quad \text{Le rapport } \frac{m}{m_i} \text{ peut être calculé à partir des pourcentages}$$

massiques de cendres dans les échantillons gazéifié Ym_{cendre} et non gazéifié $Ym_{i,\text{cendre}}$. En effet, on

peut écrire: $\frac{m}{m_i} = \frac{\frac{m}{m_{cendre}}}{\frac{m_i}{m_{cendre}}}$, car la masse de cendre ne varie pas dans l'échantillon, la masse de

cendre dans l'échantillon non gazéifié m_{cendre} est égale à la masse de cendre dans l'échantillon gazéifié m_{cendre} . Comme $\frac{m}{m_{cendre}} = \frac{1}{Ym_{cendre}}$ et $\frac{m_i}{m_{cendre}} = \frac{1}{Ym_{i,cendre}}$, on obtient:

$$X_C = 1 - \frac{Ym_c}{Ym_{i,c}} \frac{Ym_{i,cendre}}{Ym_{cendre}} \quad (16)$$

Cette dernière expression a été utilisée pour calculer les taux de consommation de carbone dans les échantillons analysés (annexe A3).

ANNEXES

Annexe A1

CALCUL DE LA HAUTEUR STATIQUE DU LIT A PARTIR DE LA MASSE DE SOLIDE CHARGÉE DANS LE RÉACTEUR

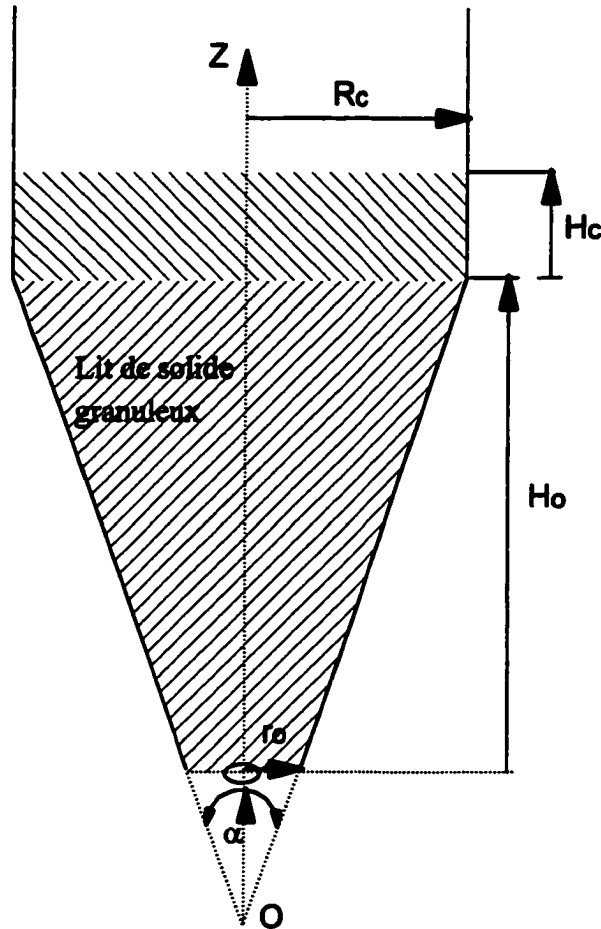


Figure A1.1 Définition des grandeurs géométriques utilisées dans le calcul de la hauteur du lit.

La hauteur statique du lit est calculée connaissant la densité apparente du solide granuleux ρ_b , la masse du solide m , l'angle du cône α et le rayon à la base r_o . La procédure utilisée est la suivante:

On calcule la hauteur statique du lit en supposant que sa hauteur ne dépasse pas la partie conique en utilisant l'équation (A1.1) :

$$H = \left[\left(\frac{r_o}{\tan(\alpha/2)} \right)^3 + \frac{3}{\pi \tan^2(\alpha/2)} \frac{m}{\rho_b} \right]^{1/3} - \frac{r_o}{\tan(\alpha/2)} \quad (\text{A1.1})$$

où:

- H est la hauteur statique du lit en cm

- r_o est le rayon à la base du cône en cm ($r_o = 0.5$ cm)

- ρ_b est la densité apparente du solide granuleux (g/cm³)

- α est l'angle du cône

- m est la masse du solide (g)

Ensuite on calcule la hauteur du cône H_o qui dépend de l'angle α par l'équation (A1.2)

$$H_o = \frac{R_c - r_o}{\tan(\alpha/2)} \quad (\text{A1.2})$$

Où R_c est le rayon de la colonne cylindrique.

On compare H calculé par l'équation (A1.1) à H_o . Si $H < H_o$, la hauteur calculée par l'équation (A1.1) est la hauteur statique du lit, sinon on calcule H en utilisant l'équation (A1.3) ci-dessous:

$$H = \frac{R_c - r_o}{\tan(\alpha/2)} + \frac{m}{\rho_b \pi R_c^2} - \frac{R_c}{3 \tan(\alpha/2)} \left[1 - \left(\frac{r_o}{R_c} \right)^3 \right] \quad (\text{A1.3})$$

Cette équation peut s'écrire

$$H = H_o + H_c$$

où H_c est la hauteur du lit dans la zone cylindrique. Elle est donnée par l'équation (A1.4):

$$H_c = \frac{m}{\rho_b \pi R_c^2} - \frac{R_c}{3 \tan(\alpha/2)} \left[1 - \left(\frac{r_o}{R_c} \right)^3 \right] \quad (\text{A1.4})$$

H_o est donné par l'équation (A1.2).

les hauteurs H_o calculées pour les différents cônes utilisés sont regroupées dans le tableau A1.1 ci-dessous.

TABLEAU A1.1 HAUTEUR DU CÔNE POUR LES DIFFÉRENTS ANGLES DE CÔNE UTILISÉS.

R_c (cm)	r_o (cm)	α (degrés)	H_o (cm)
7.15	0.5	20	37.7
7.15	0.5	40	18.27
7.15	0.5	60	11.52

Annexe A2
CONDITIONS OPÉRATOIRES ET VALEURS MESURÉES POUR LES EXPÉRIENCES SUR L'ÉTUDE
PARAMÉTRIQUE DE L'HYDRODYNAMIQUE.

N° Exp.	Angle du cône (degrés)	Poudre Al ₂ O ₃ Grit	\bar{d}_p (mm)	Débit de gaz (SLPM)	P (kW)	P _{th} (kW)	Tgi (K)	U _i (m/s)	m _{max} (g)	H _{max} (mm)
1	60	Grit 60	0.26	15	13.8	5.8	10 821	785	4 200	206
2	60	Grit 46	0.45	15	13.8	5.8	10 821	785	4 097	203
3	60	Grit 46	0.45	20	14.3	6.3	9 636	903	6 113	266
4	60	Grit 30	0.74	10	12.9	4.6	11 537	577	1 707	125
5	60	Grit 30	0.74	15	13.8	5.8	10 821	785	2 485	148
6	60	Grit 30	0.74	20	14.3	6.3	9 636	903	3 697	184
7	60	Grit 30	0.74	25	15.6	7.4	9 203	1 072	3 900	190
8	60	Grit 24	0.84	10	12.9	4.6	11 537	577	603	86
9	60	Grit 24	0.84	15	13.8	5.8	10 821	785	1 754	127
10	60	Grit 24	0.84	20	14.3	6.3	9 636	903	3 270	173
11	60	Grit 24	0.84	25	15.6	7.4	9 203	1 072	3 611	183
12	60	Grit 20	0.98	15	13.8	5.8	10 821	785	1 100	106
13	60	Grit 20	0.98	20	14.3	6.3	9 636	903	2 661	151
14	60	Grit 20	0.98	25	15.6	7.4	9 203	1 072	3 587	178
15	60	Grit 12	1.64	10	12.9	4.6	11 537	577	327	68
16	60	Grit 12	1.64	15	13.8	5.8	10 821	785	620	87
17	60	Grit 12	1.64	20	14.3	6.3	9 636	903	954	101
18	60	Grit 12	1.64	25	15.6	7.4	9 203	1 072	969	102
19	40	Grit 60	0.26	15	13.8	5.8	10 821	785	3 827	238
20	40	Grit 46	0.45	15	13.8	5.8	10 821	785	2 955	210
21	40	Grit 46	0.45	20	14.3	6.3	9 636	903	4 095	246
22	40	Grit 30	0.74	15	13.8	5.8	10 821	785	2 563	194
23	40	Grit 30	0.74	20	14.3	6.3	9 636	903	2 756	199
24	40	Grit 30	0.74	25	15.6	7.4	9 203	1 072	3 348	217

Annexe A2 (suite)

N° Exp.	Angle du cône (degrés)	Poudre Al ₂ O ₃ Grit	\bar{d}_p (mm)	Débit de gaz (SLPM)	P (kW)	P _{th} (kW)	T _{gi} (K)	U _i (m/s)	m _{max} (g)	H _{max} (mm)
25	40	Grit 24	0.84	15	13.8	5.8	10 821	785	1 501	160
26	40	Grit 24	0.84	20	14.3	6.3	9 636	903	2 450	191
27	40	Grit 24	0.84	25	15.6	7.4	9 203	1 072	2 600	196
28	40	Grit 20	0.98	15	13.8	5.8	10 821	785	610	113
29	40	Grit 20	0.98	20	14.3	6.3	9 636	903	1 132	143
30	40	Grit 20	0.98	25	15.6	7.4	9 203	1 072	2 055	177
31	40	Grit 12	1.64	15	13.8	5.8	10 821	785	123	62
32	40	Grit 12	1.64	20	14.3	6.3	9 636	903	176	72
33	40	Grit 12	1.64	25	15.6	7.4	9 203	1 072	295	87
34	60	Grit 30	0.74	15	13.8	5.8	10 821	785	2 444	147
35	60	Grit 30	0.74	20	14.3	6.3	9 636	903	3 238	170
36	60	Grit 30	0.74	25	15.6	7.4	9 203	1 072	4 127	197
37	60	Grit 30	0.74	30	16.5	8.1	8 541	1 186	6 595	270
38	60	Grit 24	0.84	15	13.8	5.8	10 821	785	1 638	123
39	60	Grit 24	0.84	20	14.3	6.3	9 636	903	2 615	153
40	60	Grit 24	0.84	25	15.6	7.4	9 203	1 072	3 196	171
41	60	Grit 24	0.84	30	16.5	8.1	8 541	1 186	3 618	183
42	60	Grit 20	0.98	15	13.8	5.8	10 821	785	961	101
43	60	Grit 20	0.98	20	14.3	6.3	9 636	903	2 473	146
44	60	Grit 20	0.98	25	15.6	7.4	9 203	1 072	3 006	161
45	60	Grit 20	0.98	30	16.5	8.1	8 541	1 186	3 325	171
46	60	Grit 12	1.64	15	13.8	5.8	10 821	785	590	85
47	60	Grit 12	1.64	20	14.3	6.3	9 636	903	947	101
48	60	Grit 12	1.64	25	15.6	7.4	9 203	1 072	992	103
49	60	Grit 12	1.64	30	16.5	8.1	8 541	1 186	1 395	116
50	60	Grit 12	1.64	40	18	9.6	7 933	1 459	1 572	121
51	60	Grit 12	1.64	50	19.9	11	7 657	1 755	1 857	130
52	40	Grit 30	0.74	15	13.8	5.8	10 821	785	1 406	156

Annexe A2 (suite)

N° Exp.	Angle du cône (degrés)	Poudre Al ₂ O ₃ Grit	\bar{d}_p (mm)	Débit de gaz (SLPM)	P (kW)	P _{th} (kW)	Tgi (K)	U _i (m/s)	m _{max} (g)	H _{max} (mm)
53	40	Grit 30	0.74	20	14.3	6.3	9 636	903	2 348	187
54	40	Grit 30	0.74	25	15.6	7.4	9 203	1 072	3 348	217
55	40	Grit 30	0.74	30	16.5	8.1	8 541	1 186	4 979	266
56	40	Grit 24	0.84	15	13.8	5.8	10 821	785	841	130
57	40	Grit 24	0.84	20	14.3	6.3	9 636	903	1 690	167
58	40	Grit 24	0.84	25	15.6	7.4	9 203	1 072	2 131	182
59	40	Grit 24	0.84	30	16.5	8.1	8 541	1 186	2 662	198
60	40	Grit 20	0.98	15	13.8	5.8	10 821	785	882	130
61	40	Grit 20	0.98	20	14.3	6.3	9 636	903	1 489	157
62	40	Grit 20	0.98	25	15.6	7.4	9 203	1 072	1 680	164
63	40	Grit 20	0.98	30	16.5	8.1	8 541	1 186	2 383	187
64	40	Grit 12	1.64	15	13.8	5.8	10 821	785	129	63
65	40	Grit 12	1.64	20	14.3	6.3	9 636	903	161	69
66	40	Grit 12	1.64	25	15.6	7.4	9 203	1 072	213	77
67	40	Grit 12	1.64	30	16.5	8.1	8 541	1 186	322	90
68	40	Grit 12	1.64	40	18	9.6	7 933	1 459	530	109
69	40	Grit 12	1.64	50	19.9	11	7 657	1 755	782	126
70	60	Grit 30 *	0.74	15.3	13.8	5.8	10 716	792	2 496	148
71	60	Grit 30 *	0.74	17.8	14.2	6.1	10 212	862	2 886	160
72	60	Grit 30 *	0.74	20.2	14.6	6.5	9 734	925	3 276	172
73	60	Grit 30 *	0.74	22.5	15	6.9	9 423	993	3 666	183
74	60	Grit 30 *	0.74	24.6	15.4	7.3	9 184	1 055	4 056	195
75	60	Grit 30 *	0.74	26.1	15.7	7.6	9 039	1 099	4 680	213
76	60	Grit 30 *	0.74	26.6	15.8	7.6	8 972	1 109	4 900	220
77	60	Grit 30 *	0.74	28.5	16.1	7.9	8 711	1 154	5 850	248
78	60	Grit 24 *	0.84	15.4	13.8	5.8	10 697	795	1 720	125
79	60	Grit 24 *	0.84	17.6	14.2	6.1	10 244	859	2 150	138
80	60	Grit 24 *	0.84	19.8	14.6	6.4	9 813	916	2 580	151

Annexe A2 (suite)

N° Exp.	Angle du cône (degrés)	Poudre Al ₂ O ₃ Grit	\bar{d}_p (mm)	Débit de gaz (SLPM)	P (kW)	P _{th} (kW)	Tgi (K)	U _i (m/s)	m _{max} (g)	H _{max} (mm)
81	60	Grit 24 *	0.84	23.4	15.2	7.1	9 317	1 018	3 010	164
82	60	Grit 24 *	0.84	27.9	16	7.8	8 787	1 138	3 440	176
83	60	Grit 20 *	0.98	15.1	13.7	5.8	10 772	785	980	101
84	60	Grit 20 *	0.98	17.3	14.1	6.1	10 299	851	1 680	123
85	60	Grit 20 *	0.98	20.9	14.8	6.6	9 633	947	2 380	143
86	60	Grit 20 *	0.98	23.1	15.1	7	9 356	1 008	2 800	155
87	60	Grit 20 *	0.98	26.2	15.7	7.6	9 033	1 101	3 080	164
88	60	Grit 20 *	0.98	32.8	16.8	8.4	8 280	1 254	3 500	176
89	60	Grit 12 *	1.64	15.6	13.8	5.8	10 667	800	630	87
90	60	Grit 12 *	1.64	16.5	14	6	10 463	828	700	90
91	60	Grit 12 *	1.64	22.3	15	6.8	9 450	987	1 050	105
92	60	Grit 12 *	1.64	34.2	17.1	8.7	8 195	1 293	1 400	116
93	60	Grit 12 *	1.64	46.2	19.2	10.5	7 739	1 647	1 750	127
94	40	Grit 30 *	0.74	15	13.7	5.7	10 742	777	1 404	155
95	40	Grit 30 *	0.74	19.1	14.5	6.3	9 946	898	2 184	182
96	40	Grit 30 *	0.74	21.1	14.8	6.6	9 605	952	2 574	194
97	40	Grit 30 *	0.74	23.1	15.1	7	9 354	1 009	2 964	206
98	40	Grit 30 *	0.74	25	15.5	7.4	9 215	1 077	3 354	217
99	40	Grit 30 *	0.74	26.2	15.7	7.6	9 025	1 103	3 744	229
100	40	Grit 30 *	0.74	27.4	15.9	7.7	8 852	1 128	4 134	240
101	40	Grit 30 *	0.74	28.6	16.1	7.9	8 698	1 155	4 520	252
102	40	Grit 24 *	0.84	15.1	13.8	5.8	10 761	785	860	131
103	40	Grit 24 *	0.84	17.6	14.2	6.1	10 239	860	1 290	152
104	40	Grit 24 *	0.84	20.3	14.7	6.5	9 716	929	1 720	168
105	40	Grit 24 *	0.84	25.2	15.5	7.5	9 189	1 080	2 150	182
106	40	Grit 24 *	0.84	29.2	16.2	8	8 623	1 170	2 580	195
107	40	Grit 20 *	0.98	15.8	13.9	5.9	10 615	807	980	135
108	40	Grit 20 *	0.98	19.3	14.5	6.3	9 920	902	1 400	154

Annexe A2 (suite)

N° Exp.	Angle du cône (degrés)	Poudre Al ₂ O ₃ Grit	\bar{d}_p (mm)	Débit de gaz (SLPM)	P (kW)	P _{th} (kW)	T _{gi} (K)	U _i (m/s)	m _{max} (g)	H _{max} (mm)
109	40	Grit 20 *	0.98	22.1	15	6.8	9 471	982	1 680	164
110	40	Grit 20 *	0.98	28	16	7.9	8 881	1 156	2 100	178
111	40	Grit 20 *	0.98	33	16.9	8.5	8 267	1 260	2 800	199
112	40	Grit 12 *	1.64	16.7	14	6	10 425	833	140	65
113	40	Grit 12 *	1.64	24.8	15.4	7.3	9 168	1 059	210	77
114	40	Grit 12 *	1.64	28.1	16	8	8 874	1 160	280	86
115	40	Grit 12 *	1.64	31.3	16.6	8.2	8 378	1 216	350	93
116	40	Grit 12 *	1.64	34.7	17.2	8.7	8 167	1 309	420	100
117	40	Grit 12 *	1.64	38.1	17.8	9.3	8 018	1 407	490	106
118	40	Grit 12 *	1.64	41.2	18.3	9.8	7 904	1 501	560	111
119	40	Grit 12 *	1.64	44	18.8	10.1	7 806	1 579	630	116
120	40	Grit 12 *	1.64	46.7	19.3	10.5	7 726	1 662	700	121
121	40	Grit 12 *	1.64	49.5	19.8	10.9	7 659	1 742	770	125

(*) distingue les expériences faites en mode d'opération 2 (mode 2) par rapport à celles faites en mode 3 (mode 3) qui ne sont pas affectées d'indice.

ANALYSES CHIMIQUES

Les méthodes d'analyse utilisées pour le coke sont celles établies pour la caractérisation du charbon. Elles sont décrites en détail dans plusieurs références dont [WEN et Coll., 1979] et [MONTGOMERY, 1978]. L'analyse peut être détaillée "Ultimate analysis", ou plus restreinte "proximate analysis".

Dans la procédure "proximate analysis", l'échantillon est d'abord chauffé à une température légèrement au dessus de la température d'ébullition de l'eau ce qui permet par une mesure de perte de masse de déterminer la *teneur en eau* de l'échantillon. Ce dernier est ensuite chauffé à une température autour de 900 °C dans des conditions où le risque d'oxydation des résidus est éliminé. La perte de masse mesurée au cours de cette opération permet de déterminer la teneur en *matières volatiles*. Le résidu obtenu est ensuite brûlé en présence d'oxygène et la perte de masse au cours de cette opération est liée à la teneur en *carbone fixe*. Le résidu final après cette dernière opération permet de déterminer la teneur en *cendres* de l'échantillon. Les protocoles standard sont décrits dans la référence [MONTGOMERY, 1978].

Dans la procédure "ultimate analysis", on détermine en plus des paramètres: teneurs en eau et en cendres, la composition élémentaire de l'échantillon séché. On détermine principalement la teneur en carbone, hydrogène, oxygène, azote et soufre. Ces teneurs sont souvent exprimées en masse de l'élément par rapport à la masse de l'échantillon exempte d'eau et de cendres "*maf*". La procédure "ultimate analysis" est aussi régie par des protocoles standard [MONTGOMERY, 1978].

Analyses du coke initial

Les analyses chimiques du coke avant traitement sont présentées aux tableaux A3.1 et A3.2. Dans le tableau A3.3 est présentée la composition minérale des cendres.

TABLEAU A3.1 ANALYSE RESTREINTE "PROXIMATE ANALYSIS" DU COKE DE PÉTROLE INITIAL.

	<i>Echantillon brute</i>	<i>Echantillon sec</i>
% humidité	2.00	--
% matière volatile	11.43	11.66
% carbone fixe	79.98	81.62
% cendres	6.59	6.72
Total	100.00	100.00

TBLEAU A3.2 ANALYSE DÉTAILLÉE "ULTIMATE ANALYSIS" DU COKE DE PÉTROLE INITIAL. (base: échantillon sec)

<i>Élément</i>	<i>% massique</i>
C	81.62
H	1.14
N	1.75
S	6.82
Cendre	6.72
O (par différence)	1.95

TABLEAU A3.3 COMPOSITION DES CENDRES

<i>Composé minéral</i>	<i>% massique</i>
SiO ₂	44.65
Al ₂ O ₃	25.2
Fe ₂ O ₃	10.51
TiO ₂	3.01
CaO	5.18
MgO	1.44
Na ₂ O	1.28
K ₂ O	1.86
V ₂ O ₅	3.83
NiO	1.51
LDF	1.49

Analyses des échantillons après expérience

En fin d'expériences, des échantillons de poudre ont été recueilli des différents éléments du système: réacteur, collecteur et filtre. Ces échantillons sont analysés pour déterminer la composition élémentaire (%C, %H, % cendres) ainsi que le taux de soufre. Les analyses chimiques ainsi que la description des différents échantillons analysés sont résumées dans le tableau A3.4 pour les expériences avec le coke de grosse taille ($841 \mu\text{m} \leq dp \leq 3350 \mu\text{m}$) et dans le tableau A3.5 pour les expériences avec le coke de taille fine ($dp \leq 425 \mu\text{m}$).

taux de consommation de carbone dans les échantillons

Le taux de consommation de carbone dans les échantillons, X_C , a été calculé à partir des analyses chimiques (tableaux A3.4 et A3.5) en se basant sur l'hypothèse que les cendres sont distribués de façon homogène et que leur masse dans un échantillon ne varie pas au cours de la gazéification. L'équation A3.1(voire appendice pour le développement) a été utilisée pour le calcul du taux de conversion du carbone pour les différents échantillons analysés.

$$X_C = 1 - \frac{Y_{mC}}{Y_{miC}} \frac{Y_{mi\text{cendre}}}{Y_{m\text{cendre}}} \quad (\text{A3.1})$$

où Y_{mC} et Y_{miC} sont respectivement les % massiques du carbone dans l'échantillon initiale (non gazéifié) et dans l'échantillon gazéifié.

$Y_{m\text{Cendre}}$ et $Y_{mi\text{Cendre}}$ sont respectivement les % massiques des cendres dans l'échantillon initiale (non gazéifié) et dans l'échantillon gazéifié.

Le taux de conversion varie entre 16 et 80% pour les échantillons issus des expériences avec le coke gossier. Ce taux est plus faible dans le cas des échantillons issus du coke fin, il varie entre 1.5 et 14.5%. L'efficacité du réacteur dans le cas des expériences avec le coke fin est réduite à cause des problèmes d'élutriation.

Le taux de conversion du carbone dans les échantillons calculé à partir de l'équation (A3.1) et présenté dans les tableaux A3.4 et A3.5 est supérieur au taux de conversion moyen calculé à partir de la masse de coke consommée après chaque expérience. Pour les différentes expériences ce taux varie entre 6 et 16% ce qui est loin du taux maximal mesuré dans les échantillons par analyse chimique et utilisation de l'équation A3.1. Les hypothèses utilisées pour l'établissement de l'équation A3.1 principalement l'invariabilité de la masse de cendre entre

TABLEAU A3.4 ANALYSE DES ÉCHANTILLONS ISSUS DES EXPÉRIENCES AVEC LE COKE GROSSIER

Exp N°	Provenance de l'échantillon	label de l'échantillon	Description	Analyse élémentaire				Taux de conversion (%)
				% C	% H	% S	% cendres	
C ₁	Réacteur	--	--	--	--	--	--	--
	Collecteur	h12	dp < 53 µm	73.25	0.47	5.42	16.97	64.5
	Filtre	--	--	--	--	--	--	--
C ₂	Réacteur	--	--	--	--	--	--	--
	Collecteur	h20	10 min	74.33	0.66	5.62	15.66	60.9
		h21	30 min	77.75	0.23	5.62	14.82	56.8
		h2	50 min	78.09	0.28	5.9	12.41	48.2
	Filtre	h13	global	81.91	0	4.84	12.98	48
C ₃	Réacteur	--	--	--	--	--	--	--
	Collecteur	--	--	--	--	--	--	--
	Filtre	h14	global	69.29	0.06	4.9	25.62	77.7
C ₄	Réacteur	h4	dp < 300 µm	76.89	0.12	6.14	14.26	55.6
	Collecteur	H3	global	78.89	0	5.37	15.37	57.7
	Filtre	--	--	--	--	--	--	--
C ₅	Réacteur	h25	global	83.47	0	6.82	9.54	27.9
		h11	841 < dp < 1000 µm	83.92	0	6.81	9.13	24.4
		h5	dp < 300 µm	80.21	0	6.55	11.49	42.5
	Collecteur	h6	global	81.22	0	5.81	11.15	40
	Filtre	--	--	--	--	--	--	--
C ₆	Réacteur	h23	global	84	0	6.88	9.43	26.6
		h8	agglom. dp > 3.35 mm	--	--	0.75	--	-
		h22	1.68 < dp < 2.38 mm	84.1	0	6.88	8.24	16
		h7	841 < dp < 1000 µm	83.81	0	6.82	9.04	23.6
		h9	dp < 300 µm	76.42	0	6.2	16.84	62.6
	Collecteur	h10	global	82.69	0	5.65	11.94	43
	Filtre	h15	global	77.95	0	4.35	17.75	63.9

TABLEAU A3.5 ANALYSE DES ÉCHANTILLONS ISSUS DES EXPÉRIENCES AVEC LE COKE FIN

Exp N°	Provenance de l'échantillon	label de l'échantillon	Description	Analyse élémentaire				Taux de conversion (%)
				% C	% H	% S	% cendres	
C ₇	Réacteur	h24	global	77.49	1.24	6.53	7.46	14.5
	Collecteur	--	--	--	--	--	--	--
	Filtre	--	--	--	--	--	--	--
C ₈	Réacteur	h16	global	81.56	1.15	6.79	6.82	1.5
	Collecteur	--	--	--	--	--	--	--
	Filtre	--	--	--	--	--	--	--
C ₉	Réacteur	h17	global	80.42	1.17	6.59	6.73	1.6
	Collecteur	h18	dp < 75 µm	81.45	0.81	6.46	7.66	12.5
	Filtre	--	--	--	--	--	--	--
C ₁₀	Réacteur	--	--	--	--	--	--	--
	Collecteur	h19	dp < 75 µm	84	0.56	5.72	7.04	1.8
	Filtre	--	--	--	--	--	--	--

l'échantillon gazéifié et celui non gazéifié conduit donc à une surestimation du taux de conversion. Cependant les résultats obtenus par l'analyse chimique sont consistants et permettent de discuter l'évolution de la consommation de carbone en fonction de la taille des particules dans les échantillons analysés ainsi que l'évolution du soufre.

Évolution en fonction de la taille des particules

L'analyse des résultats du taux de consommation du carbone dans les échantillons présentés dans le tableau A3.4 montre que le taux de consommation du carbone est plus important pour les particules de faible diamètre. Cette tendance est valable aussi bien pour les particules recueillies dans le réacteur que dans le collecteur et le filtre. Dans le réacteur (expérience C₆) on observe une diminution du taux de consommation de carbone lorsque la taille des particules augmente.

Dans le collecteur (Expérience C₂) les particules éluées en début d'expérience ont un taux de conversion supérieur à celles éluées en fin d'expérience.

Évolution du taux de soufre

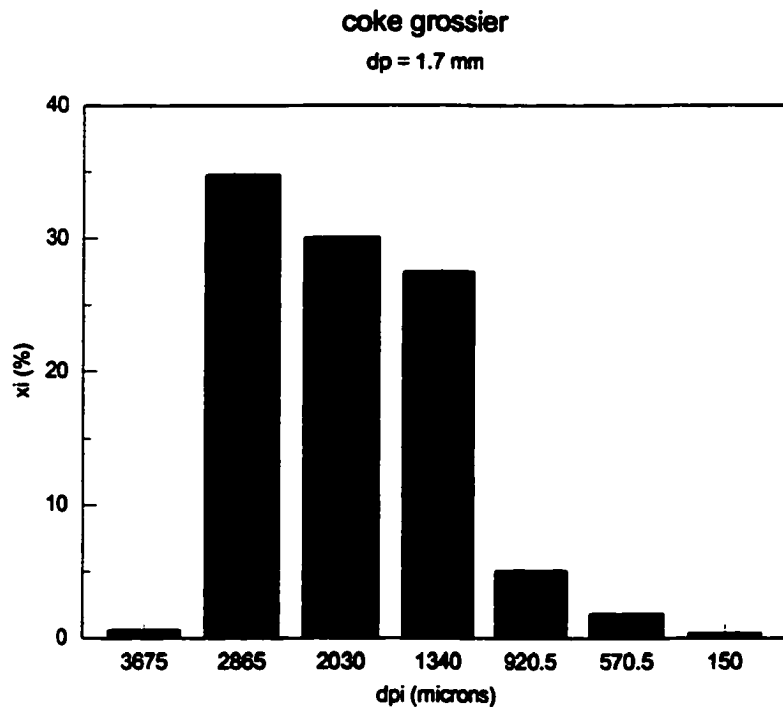
L'analyse des résultats de mesure du taux de soufre dans les échantillons présentés dans les tableaux A3.4 et A3.5 montre que le taux de soufre dans les échantillons de poudre éluée (collecteur et filtre) est plus faible comparativement au taux de soufre dans le coke brut (6.82%).

Annexe A4

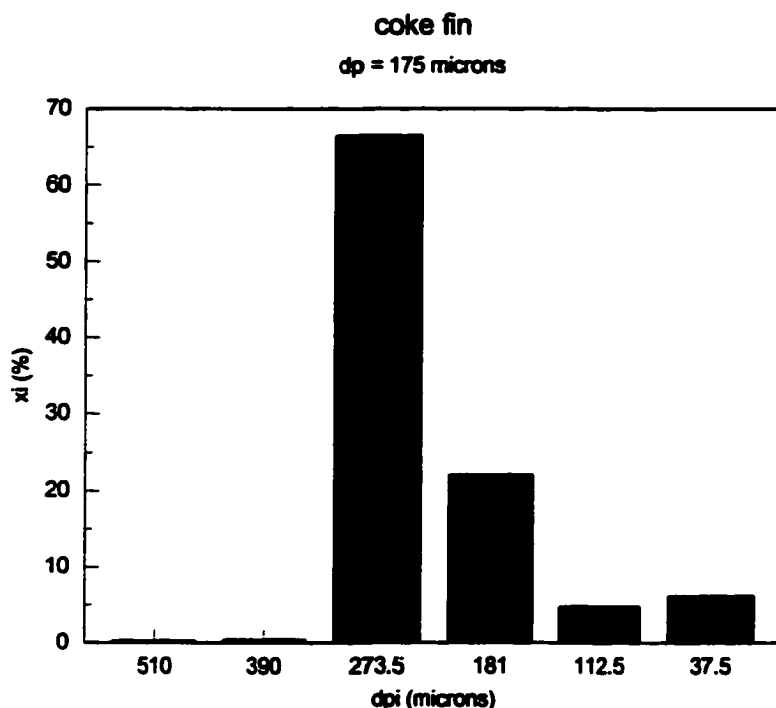
ATTRITION ET ÉLUTRIATION AU COURS DE LA GAZÉIFICATION

Distribution de taille dans le coke initial

La catégorie de poudre de coke grossier a été initialement choisie comme fraction de poudre dans le lot initial recueillie après tamisage entre les tamis d'ouverture 841 et 3350 μm ($841 \leq dp \leq 3350 \mu\text{m}$). Cependant après passage par l'alimenteur à visse, la poudre a une distribution de taille telle que présentée en figure A4.1(a) avec présence de particules de taille inférieure à 841 μm . L'alimenteur de poudre a une action négligeable sur la poudre fine et la distribution de taille présentée en figure A4.1(b) est celle de la poudre après passage par l'alimenteur ; elle est identique à la distribution de taille dans la poudre initiale.



(a)



(b)

Figure A4.1 Distribution de taille dans les deux catégories de poudre de coke de pétrole utilisées. (a) coke grossier, (b) coke fin.

Attrition et élutriation

L'attrition du matériel au cours des expériences de gazéification du coke de pétrole a été évaluée par tamisage du matériel avant et après chaque expérience. La procédure a été décrite au chapitre 4. L'élutriation a été évaluée par le pourcentage massique de coke recueilli dans le collecteur et le filtre en fin d'expérience.

La distribution du coke de pétrole entre les différents éléments du système: réacteur, collecteur et filtre en fin de chaque expérience est rappelée dans le tableau A4.1. Dans le tableau A4.2 sont résumés les résultats de l'attrition et de l'élutriation au cours des expériences de gazéification. Pour les expériences faites avec le coke de granulométrie grosse (C_1 à C_6), la charge récupérée dans le réacteur est tamisée et la diminution du diamètre de poudre dans le réacteur ainsi que le taux de fines produits ont été calculés. Pour les expériences avec le coke de granulométrie fine (C_7 à C_{10}), la charge récupérée dans le réacteur en fin d'expérience n'a pas été tamisée et seul le pourcentage massique de charge élutrié a été calculé. En effet pour ces

**TABLEAU A4.1 DISTRIBUTION DU COKE ENTRE LES DIFFÉRENTS ÉLÉMENTS: RÉACTEUR,
COLLECTEUR ET FILTRE EN FIN D'EXPÉRIENCES.**

Exp. label	Durée (min)	Charge initiale (g)	Masse recueillie dans le collecteur (g)	Masse recueillie sur le filtre (g)	Masse recueillie dans le réacteur (g)	% de charge élutrié (%)	Coke consommé (par différence) (g)
C ₁	32	468	60	--	358	13	50
C ₂	50	750	39	6	623	6	82
C ₃	74	750	50	7	585	7.6	108
C ₄	61	1 400	56	--	1 126	4	218
C ₅	66	1 400	86	--	1 209	6	105
C ₆	89	1 473	172	8	1 124	12	169
C ₇	36	750	288	--	373	38.4	89
C ₈	37	750	472	--	216	63	62
C ₉	34	1 500	963	12	409	65	116
C ₁₀	32	1 500	1 288	25	99	87.5	88

TABLEAU A4.2 ATTRITION ET ÉLUTRIATION AU COURS DE LA GAZÉIFICATION DU COKE DE PÉTROLE DANS LE RÉACTEUR À LIT SOUFFLÉ PAR PLASMA.

Exp. N°	Catégorie de Poudre de coke	Charge initiale (g)	masse recueillie dans le réacteur (g)	Durée (min)	d _p initial (µm)	d _p final réacteur (µm)	$\frac{\partial d_p}{d_p}$ (%)	Taux massique de fines produit (%)	% de charge élué (%)	Taux moyen d'attrition (% /min)
C ₁	grosse	468	358	32	1 700	722	57.5	25.6	13	0.8
C ₂	grosse	750	623	50	1 700	642	62.2	20.7	6	0.41
C ₃	grosse	750	585	74	1 700	617	63.7	24.2	7.6	0.33
C ₄	grosse	1 400	1 126	61	1 700	629	63	19.5	4	0.32
C ₅	grosse	1 400	1 209	66	1 140	597	47.6	18.9	6	0.29
C ₆	grosse	1 473	1 124	89	648	699	-7.9	11.8	12	0.13
C ₇	fine	750	373	36	175	--	--	--	38.4	--
C ₈	fine	750	216	37	175	--	--	--	63	--
C ₉	fine	1 500	409	34	175	--	--	--	65	--
C ₁₀	fine	1 500	99	32	175	--	--	--	87.5	--

expériences, la quantité de poudre (élutriée) récupérée dans le collecteur est plus importante que celle récupérée dans le réacteur en fin d'expérience. Pour certaines de ces expériences (C_9 et C_{10}), les quantités récupérées dans le collecteur et dans le filtre ont été aussi tamisées et la distribution de taille de la poudre dans ces éléments ainsi que le diamètre moyen de la poudre déterminés. Pour les expériences avec le coke de taille grossière (C_1 à C_6), les fines ont été définies comme étant la fraction de poudre de taille inférieure à $300\text{ }\mu\text{m}$. En effet dans la poudre initiale, la fraction massique de poudre de taille inférieure à $300\text{ }\mu\text{m}$ est minime (0.3 %). Dans la poudre utilisée dans l'expérience C_6 , elle est de 14%, cependant il en est tenu compte dans le calcul du taux massique de fines produits.

Poudre recueillie dans le réacteur

La distribution de taille des particules dans le réacteur avant et après chaque expérience a montré que pour les expériences C_1 à C_5 , le processus d'attrition conduit à la production de fines sans fracturation notable de particules ou agglomération. La distribution de taille des particules dans le réacteur avant et après l'expérience C_4 est illustrée en figure A4.2.

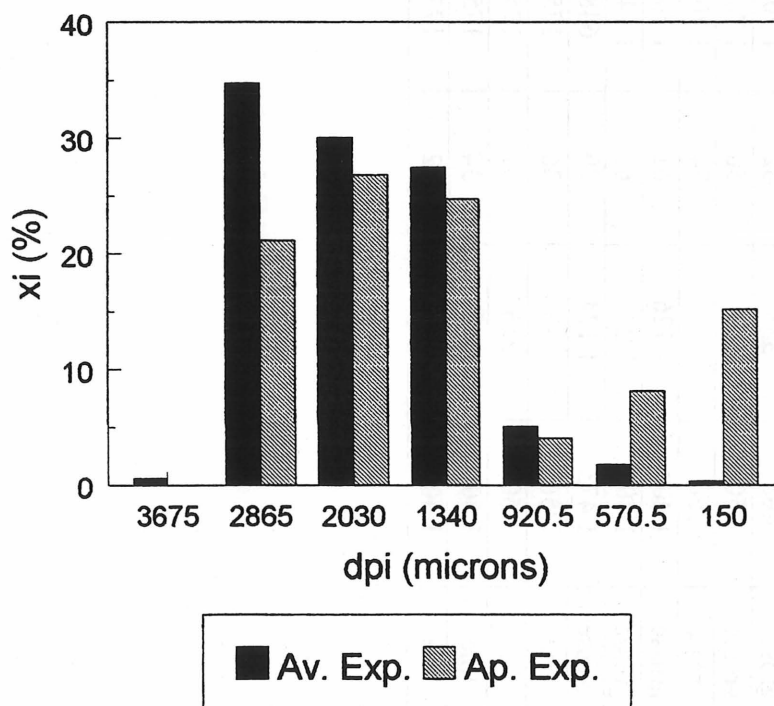


Figure A4.2

Distribution de taille des particules dans le réacteur avant et après l'expérience C_4 .

Les distributions de taille obtenues pour les autres expériences C_1 , C_2 , C_3 et C_5 sont analogues. On observe une diminution de la fraction massique X_i dans les classes de taille supérieures et augmentation de la fraction massique dans les classes de taille les plus faibles (fines). Une diminution importante du diamètre moyen des poudres dans le réacteur de 48 à 64 % est ainsi observé au cours de ces expériences.

Au cours de l'expérience C_6 un résultat différent a été observé. Cette expérience a été faite avec du coke de pétrole constitué de 82.5 % en masse de coke récupéré après pyrolyse au cours de l'expérience C_5 . La distribution de taille de poudre dans le réacteur avant et après l'expérience C_6 est illustrée en figure A4.3.

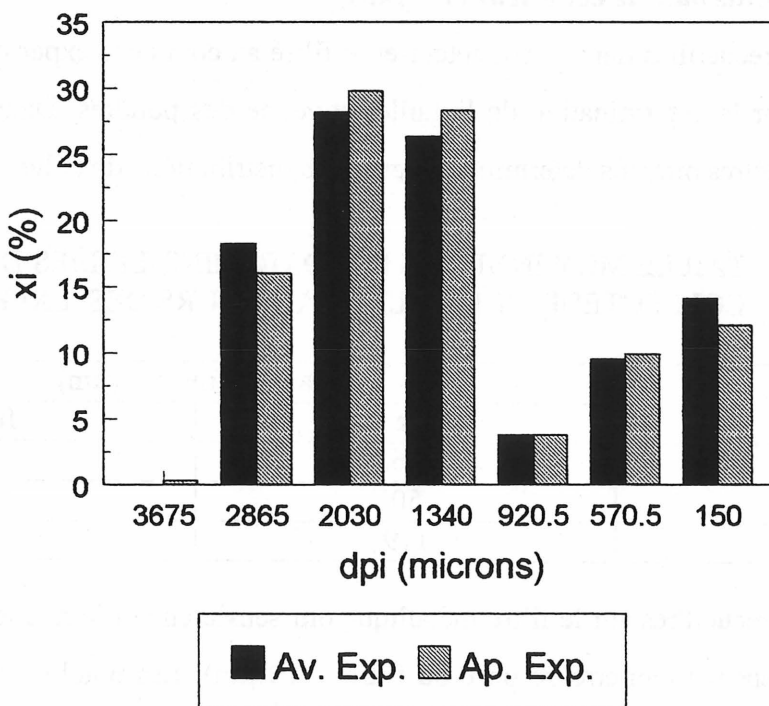


Figure A4.3 Distribution de taille des particules dans le réacteur avant et après l'expérience C_6 .

La distribution de taille au cours de cette expérience est caractérisée par une augmentation de la fraction massique dans les classes supérieures et une diminution de la fraction de fines. Une agglomération des poudres a été observée au cours de cette expérience ; elle est notamment confirmée par l'obtention de poudres (faible quantité 0.3%) de diamètre supérieur au diamètre maximal dans la poudre initiale (fraction massique dans la classe

dpi = 3675 μm). La diminution de la quantité de fines est due à l'élutriation des fines existant dans la poudre initiale mais aussi à l'agglomération. L'augmentation de la taille moyenne des poudres dans le réacteur observée après cette expérience est une conséquence de l'agglomération. Le taux massique de fines produit au cours de cette expérience comparativement aux expériences C_1 à C_5 est faible (voire tableau A4.2). D'après l'analyse de la dureté du coke en relation avec le taux de volatiles qu'il contient, il y a augmentation de la résistance à l'attrition lorsque le taux de volatiles diminue [WEN et Coll., 1979]. Le coke utilisé ayant été pyrolysé au préalable, ceci peut expliquer la diminution du taux de fines produit au cours de cette expérience. Néanmoins d'autres causes peuvent aussi contribuer à ce résultat, notamment l'agglomération observée et le fait que la taille initiale de la poudre est inférieure à celles dans les autres expériences.

Poudre recueillie dans le collecteur et le filtre

Les poudres recueillies dans le collecteur et le filtre au cours des expériences C_1 , C_6 et C_9 ont été tamisées pour la détermination de la taille moyenne des poudres. Dans le tableau A4.3 sont donnés les diamètres moyens déterminés à partir des distributions de taille.

TABLEAU A4.3 TAILLE MOYENNE DES POUDRES RECUEILLIES DANS LE COLLECTEUR ET LE FILTRE AU COURS DES EXPÉRIENCES.

Expérience	diamètre moyen (μm)	
	collecteur	filtre
C_1	36	16
C_6	50	18
C_9	119	16

Les poudres recueillies sur le filtre métallique ont sensiblement le même diamètre moyen au cours des expériences (diamètre de pore du filtre = 10 μm). Les poudres recueillies dans le collecteur pour les expériences faites avec le coke de taille grossière C_1 et C_6 ont un diamètre moyen qui est dans la gamme du diamètre de poudre élutriable calculé (20 - 70 μm). Pour l'expérience C_9 faite avec le coke de taille fine ($dp_{\text{moyen}} = 175 \mu\text{m}$), le diamètre moyen des poudres recueillies dans le collecteur est de 119 μm . En fait au cours de ces expériences l'entraînement est très important comme on peut le voir dans le tableau A4.2, il varie entre 38 et 87 % de la charge. La taille faible du matériel et la vitesse de charge faible utilisée ($\approx 56 \text{ g/min}$) favorise

l'entraînement. En effet dans ces conditions, le régime hydrodynamique est de type phase diluée et le jet de plasma n'est pas trempé, les vitesses restent élevées au cours de toute l'expérience.

Au cours de l'expérience C₂, la quantité de poudre éluée (récupérée dans le collecteur) a été pesée à différents instants (chaque 10 min). On a ainsi un suivi de l'élué au cours du temps. L'évolution de la masse de poudre éluée et du taux d'élué au cours de cette expérience sont présentés dans la figure A4.4. Le taux d'élué, E, est défini d'après [KONO, 1981] par:

$$E = \frac{1}{(M-m)} \frac{dm}{dt} \cdot 100 \quad (A4.1)$$

où m est la masse de la poudre éluée à l'instant t et M la masse de poudre chargée dans le réacteur.

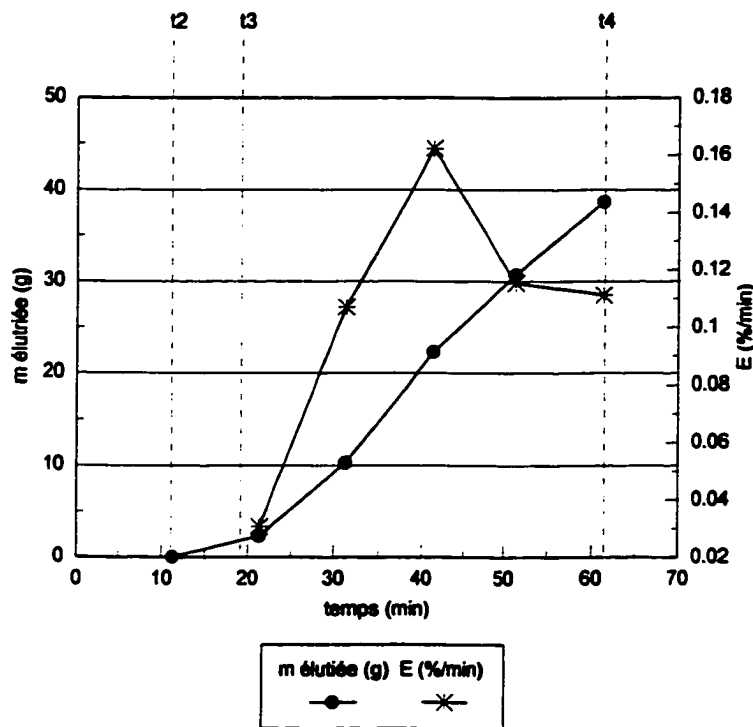


Figure A4.4

Évolution de la masse de poudre éluée et du taux d'attrition au cours de l'expérience C₂.

$t_2 = 11.3$ min: début de charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_3 = 19$ min: fin de la charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_4 = 61.5$ min: arrêt de la torche (fin d'expérience)

La courbe $E = f(t)$ en figure A4.4, montre que le taux d'élutriation augmente jusqu'à un maximum pour diminuer et tendre vers une constante. Le taux d'élutriation moyen calculé comme valeur moyenne algébrique des taux mesurés à différents instants au cours de cette expérience est de 0.10 %/min. Le taux d'attrition moyen au cours de l'expérience (voire tableau A4.2) est de 0.41 %/min. Le taux d'élutriation qui est une mesure du taux d'entraînement du matériel hors du réacteur est inférieur au taux d'attrition qui est une mesure du taux de fines produits. Bien que les deux quantités soient différentes, elles évoluent dans le même sens et l'évolution du taux d'élutriation montrée en figure A4.4 donne une indication sur l'évolution du taux d'attrition au cours de l'expérience.

Une comparaison qualitative avec les taux d'attrition obtenus dans le cas du traitement thermique d'alumine dans le réacteur (tableau 4.3 chapitre 4) permet de voir que les taux d'attrition obtenus dans le cas de la gazéification du coke de pétrole sont du même ordre de grandeur. Les taux d'attrition obtenus lors de la gazéification du coke de pétrole sont cependant d'un ordre de grandeur inférieurs au taux d'attrition obtenu par Flamant [FLAMANT et Coll., 1990] lors de la décarbonation de la calcite dans un réacteur à lit soufflé par plasma (10 %/min). Cependant, la comparaison ne peut être que qualitative car les conditions et les facteurs qui influencent l'attrition, discutés dans le chapitre 4, ne sont pas identiques dans les deux cas. En particulier les expériences de Flamant sont de durée très courte, 10 min, alors que dans la présente étude la durée de traitement est plus longue, 32 à 89 min. Sachant que l'attrition est plus importante en début d'expérience et le taux d'attrition moyen étant rapporté à la durée totale de l'expérience ceci peut contribuer à l'écart entre les taux mesurés dans les deux cas.

Annexe A5

MODES D'UTILISATION DU SPECTROMÈTRE DE MASSE

Le spectromètre de masse utilisé au cours de ce travail est de type quadripôle (VG Micromass-PC 300D). L'appareil peut fonctionner selon deux modes : qualitatif et quantitatif.

Fonctionnement en mode qualitatif

Dans le fonctionnement en mode qualitatif, l'appareil permet d'analyser les différents gaz présents à la sortie du réacteur. Les pics de masse détectés par l'appareil sont ensuite analysés manuellement à l'aide d'une table qui permet l'allocation de chaque pic à un gaz donné selon l'intensité du pic et son rang (principal, secondaire...). Ce mode a été utilisé lors des expériences C2 et C3.

Fonctionnement en mode quantitatif

La mesure des fractions molaires des gaz de sortie du réacteur utilise le mode quantitatif. Pour ce mode, l'appareil est calibré avant chaque essai. Pour la calibration, deux mélanges de gaz encadrant les gammes de concentration des gaz de sortie anticipées, sont utilisés. Les résultats sont obtenus sous forme de fichiers où les fractions molaires des différents gaz, sélectionnés lors de la procédure de calibration, sont acquises en fonction du temps. Le pas d'acquisition est typiquement de 7 s. Ce mode a été utilisé pour toutes les expériences à l'exception de C2 et C3.

Le taux de conversion et le taux de consommation du carbone sont déduits des fractions molaires de CO₂, de CO et d'Argon mesurées par le spectromètre de masse à tout instant.

Taux de conversion

Le taux de conversion est calculé à l'aide d'un bilan sur le gaz CO₂. Dans cette étude, il est défini par:

$$X_{\text{CO}_2} = \frac{\text{Nombre de moles de CO}_2 \text{ consommées}}{\text{Nombre de moles de CO}_2 \text{ initiales}} \quad (\text{A5.1})$$

L'expression (A5.1) reste la même si au lieu des quantités de moles de CO₂ (initiales et consommées), les débits molaires de CO₂ (initial et consommé) sont utilisés.

X_{CO2} peut être calculé soit à partir de la fraction molaire de CO₂ à la sortie du réacteur Y_{CO2}, soit à partir de la fraction molaire de CO mesurée à la sortie du réacteur Y_{CO} en utilisant la stochiométrie de la réaction C - CO₂. Afin de différencier entre les deux taux de conversion, le premier sera affecté de l'indice 1 et le deuxième de l'indice 2. Ainsi:

X_{1CO2} = Taux de conversion calculé à partir de Y_{CO2}

X_{2CO2} = Taux de conversion calculé à partir de Y_{CO}.

Les expressions de X_{1CO2} et de X_{2CO2} sont données par les équations (A5.2) et (A5.3). L'élaboration de ces expressions est explicitée en Appendice.

$$X_{1CO2} = 1 - \frac{Y_{CO2}}{Y_{Ar}} \frac{Y_{iAr}}{Y_{iCO2}} \quad (A5.2)$$

$$X_{2CO2} = \frac{1}{2} \frac{Y_{CO}}{Y_{Ar}} \frac{Y_{iAr}}{Y_{iCO2}} \quad (A5.3)$$

où Y_{CO2}, Y_{CO} et Y_{Ar} sont respectivement les fractions molaires de CO₂ de CO et de Ar mesurées par le spectromètre de masse dans le gaz échantillonné à la sortie du réacteur. Y_{iAr} et Y_{iCO2} sont les fractions molaires de Ar et de CO₂ dans le gaz à l'entrée du réacteur. Elles sont calculées à partir des débits volumiques des différents gaz à l'entrée du réacteur.

Le calcul de X_{CO2} à partir de l'équation (A5.3) suppose que le CO₂ n'est consommé que par la réaction C - CO₂. Donc X_{2CO2} est le taux de conversion de la réaction C - CO₂ étudiée. X_{1CO2} représente un bilan exacte sur CO₂ et tient compte de toutes les causes de disparition (ou d'apparition de CO₂) dans les réactions de gazéification susceptibles d'avoir lieu dans le réacteur, incluant la réaction C - CO₂. Si la réaction C - CO₂ est la seule à avoir lieu, on devrait avoir X_{1CO2} = X_{2CO2}.

Taux de consommation du carbone

Le taux de consommation du carbone durant l'expérience, F_C (en g/s), peut être calculé à partir des fractions molaires de CO₂ dans le gaz d'entrée, Y_{iCO2}, et de sortie, Y_{CO2} (expression F_{C1}) ou à partir de la fraction molaire de CO mesurée dans le gaz de sortie Y_{CO} (expression F_{C2}).

$$F_{c1} = 12 \dot{n} i_T \left[Y_{iCO2} - Y_{CO2} \frac{Y_{iAr}}{Y_{Ar}} \right] \quad (A5.4)$$

$$F_{c2} = 12 \dot{n} i_T \frac{Y_{co}}{(2-Y_{co})} \quad (A5.5)$$

où $\dot{n} i_T$ est le débit molaire total du gaz à l'entrée du réacteur exprimé en mole/s. Les expressions (A5.4) et (A5.4) sont obtenues à partir des expressions de X_{CO2} (expressions (A5.2) et (A5.3)) par:

$$F_c = 12 X_{CO2} \cdot \dot{n} i_{CO2} = 12 X_{CO2} \cdot \dot{n} i_T \cdot Y_{iCO2} \quad (A5.6)$$

Annexe A6

EXPÉRIENCES DE GAZÉIFICATION

Expériences avec le coke de grosse taille ($841 \leq dp \leq 3350 \mu m$)

Expérience C₁

Au cours de cette expérience qui a été la première à être faite chronologiquement, la température dans le lit n'a pas été mesurée et l'MS a été étalonné pour mesurer les fractions molaires des gaz: Ar, He, CO₂ et CO. Dans la figure A6.1 sont rapportées les fractions molaires des différents gaz dans l'effluent gazeux échantillonné à la sortie du réacteur.

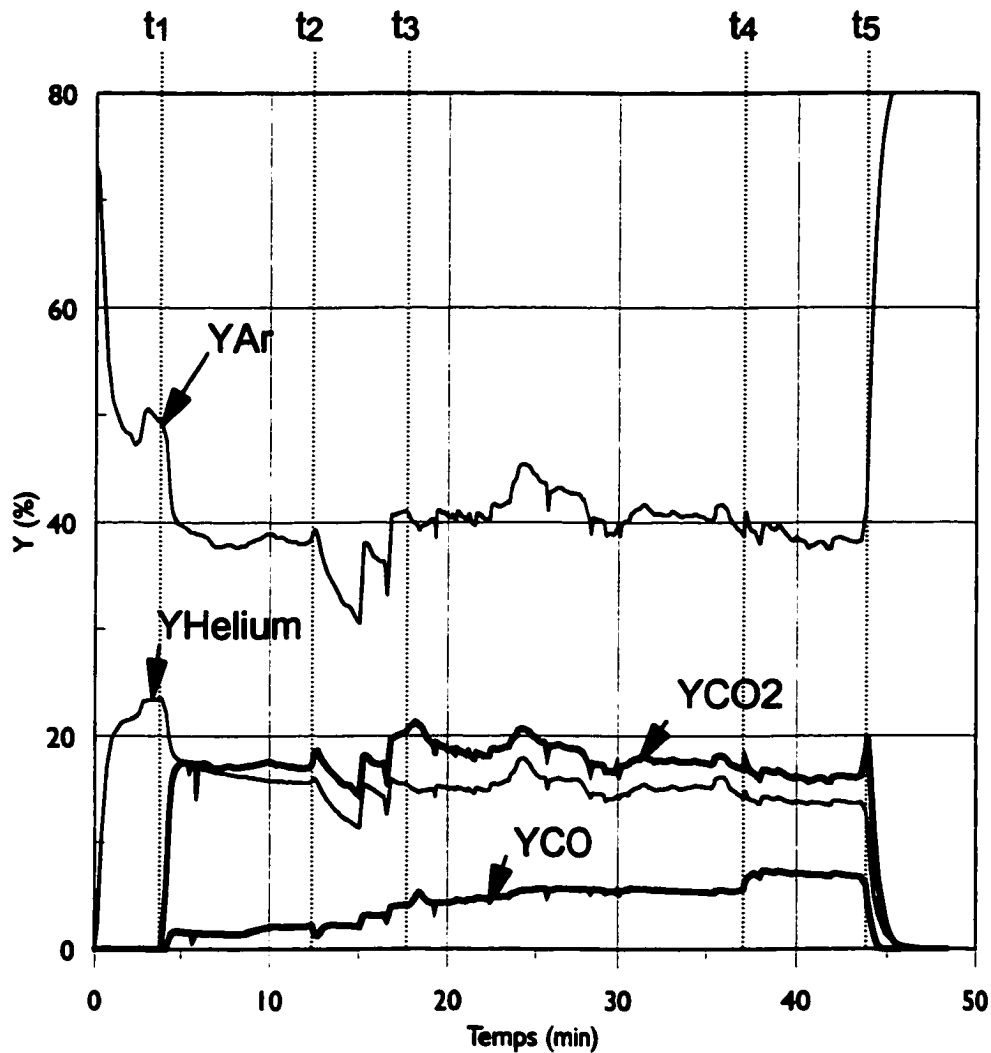


Figure A6.1 Fractions molaires des différents gaz mesurées par l'MS dans l'effluent gazeux à la sortie du réacteur au cours de l'expérience C₁.

Les temps indiqués dans la figure A6.1 correspondent à différentes phases de l'expérience.

$t_1 = 4.2$ min: début d'injection de CO_2 .

$t_2 = 12.4$ min: début de charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_3 = 17.5$ min: fin de la charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_4 = 37$ min: augmentation de la puissance d'alimentation 11 → 22 kW.

$t_5 = 43.3$ min: Arrêt de la torche (fin d'expérience).

Entre t_1 (début d'injection de CO_2) et t_2 (début de charge en coke de pétrole), le CO mesuré provient de la dissociation du CO_2 dans le plasma. À partir des fractions molaires de gaz mesurées dans cette phase, il est possible de calculer le % de CO_2 dissocié par:

$$\% \text{CO}_2(\text{dissocié}) = \frac{(Y_{i\text{CO}_2} Y_{Ar} - Y_{\text{CO}_2} Y_{iAr})}{Y_{i\text{CO}_2} Y_{Ar}} \quad (\text{A6.1})$$

où $Y_{i\text{CO}_2}$ et Y_{CO_2} sont respectivement les fractions molaires de CO_2 à l'entrée (indice i) et à la sortie du réacteur. Y_{iAr} et Y_{Ar} sont respectivement les fractions molaires d'argon à l'entrée et à la sortie du réacteur. La figure A6.2 qui est un agrandissement de la partie de la figure A6.1 entre les instants t_1 et t_2 montre la valeur des différentes fractions molaires (Y) impliquées dans l'équation (A6.1).

Avec $Y_{iAr} = 50\%$, $Y_{i\text{CO}_2} = 25\%$ imposés à l'entrée du réacteur et $Y_{Ar} = 38\%$, $Y_{\text{CO}_2} = 17\%$ relevés de la figure A6.2, l'équation (A6.1) donne un pourcentage de CO_2 dissocié dans le plasma de $\approx 10\%$. Le calcul thermodynamique qui suppose un mixage parfait présenté en annexe A5-7 prévoit un taux de dissociation de 60% pour une température enthalpique de 3000K (Au début de l'expérience C_1 $T_{gi} = 3330$ K).

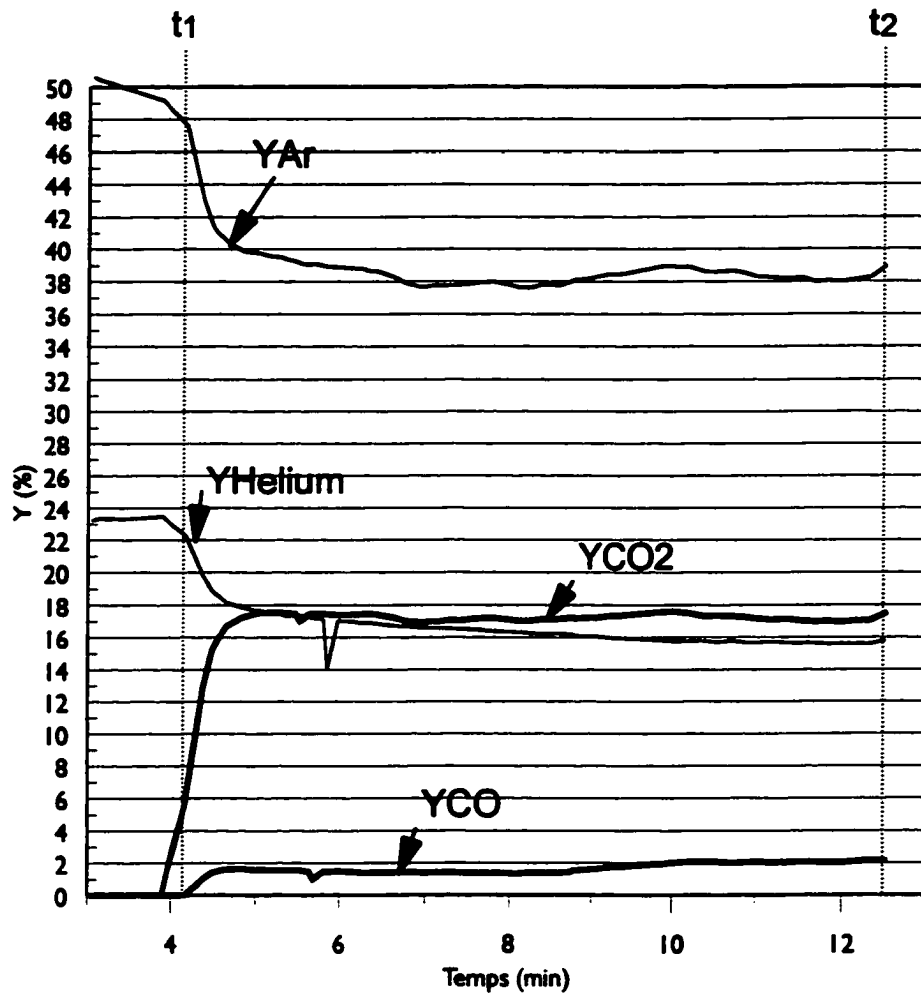


Figure A6.2 Agrandissement de la figure A6.1 dans la zone $t_1 - t_2$.

Le taux de consommation de carbone F_c (en g/s), calculé à partir des expressions A5-3.4 et A5-3.5 (voire annexe A5-3) est représenté en figure A6.3.

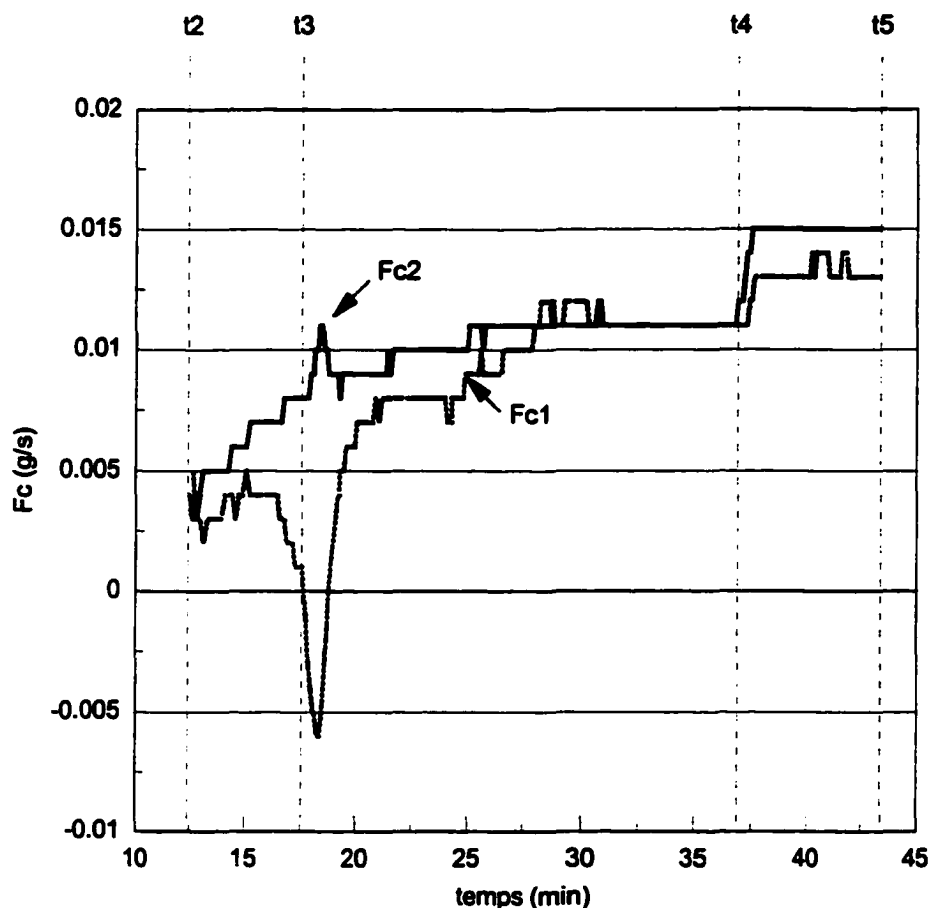


Figure A6.3 Évolution du taux de consommation du carbone F_c (F_{c1} et F_{c2}) au cours de l'expérience C_1 . Les temps indiqués (t_2 à t_5) sont les même que ceux précisés ci-avant .

Des divergences importantes dans certaines phases de l'expérience apparaissent entre les deux taux de consommation calculés à partir des fractions molaires de CO_2 (F_{c1}) et à partir de la fraction molaire de CO (F_{c2}) (les équations utilisées pour le calcul de F_{c1} et F_{c2} sont présentées en annexe A5-3). Ces divergences indiquent l'existence d'autres réactions impliquant le CO_2 , notamment la production de CO_2 par la combustion du carbone dans l'oxygène produit dans la phase initiale de l'expérience (dissociation de CO_2 dans le plasma). Ceci justifie le fait que F_{c1} est négatif pendant une certaine phase de l'expérience. La température dans le lit n'a pas été mesurée au cours de l'expérience pour pouvoir confirmer cette hypothèse. Il faut noter aussi qu'au cours de cette expérience, il y a eu des problèmes avec l'MS et le fichier de mesure des fractions

molaires a été perdu et restauré par la suite ce qui limite la confiance dans les mesures des fractions molaires.

Expériences C2 et C3

Au cours des expériences C₂ et C₃, le spectromètre de masse a été utilisé en mode qualitatif. Dans ce mode l'MS analyse les gaz de sortie et permet d'avoir les résultats sous forme de pics de masse détectés au cours de l'expérience. Les résultats obtenus à différents instants, sous forme graphique, ont été ensuite analysés et les différents pics observés sont affectés au gaz correspondant en s'aidant d'un répertoire pour l'allocation des pics fourni avec l'appareil. Les résultats pour l'expérience C₃ sont présentés dans le tableau A6.1. ci-dessous. Les résultats obtenus au cours de l'expérience C₂ sont semblables.

Les gaz détectés sont les gaz plasma (inertes) Ar et He et le gaz secondaire CO₂, présents à tout instant, et les gaz générés soit par dévolatilisation, pyrolyse ou différentes réactions gaz-solide ou en phase gazeuse entre les différents gaz générés. Au cours des deux expériences où l'MS a été utilisé, comme illustré au tableau A6.1 pour l'expérience C₃, on a détecté principalement l'oxygène, l'hydrogène, le monoxyde de carbone et la vapeur d'eau. Il est à noter que ces gaz ne sont pas détectés à tout instant au cours de la réaction. Cependant, vue la méthode d'échantillonnage adoptée (échantillonnage à la sortie du réacteur) cela n'exclue pas leur présence dans la phase gazeuse au sein du réacteur.

TABLEAU A6.1 PICS DE MASSE ET GAZ CORRESPONDANTS DÉTECTÉS PAR L'MS À DIFFÉRENTS INSTANTS AU COURS DE L'EXPÉRIENCE C₃.

Pics de masse présents à différents instants et gaz correspondants											
Temps (min)	2	4	12	16	17	18	20	28	32	40	44
0		He					Ar	CO		Ar	
2.48		He	CO ₂ CO	CO ₂ O ₂		H ₂ O	Ar	CO ₂ CO	O ₂	Ar	CO ₂
6.23		He	CO ₂ CO	CO ₂ O ₂			Ar	CO ₂ CO	O ₂	Ar	CO ₂
7.48	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
11.23	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
12.48	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
13.73	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
14.98	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
16.23	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
17.48	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
26.23	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
31.22	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
32.47	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
39.97	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
42.47	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
47.47	H ₂	He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
48.72		He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O, O ₂	H ₂ O	H ₂ O	Ar	CO ₂ CO	O ₂	Ar	CO ₂
52.47		He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O, O ₂		H ₂ O	Ar	CO ₂ CO	O ₂	Ar	CO ₂
59.13		He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O, O ₂		H ₂ O	Ar	CO ₂ CO	O ₂	Ar	CO ₂
64.95		He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O, O ₂		H ₂ O	Ar	CO ₂ CO	O ₂	Ar	CO ₂
72.45		He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O, O ₂		H ₂ O	Ar	CO ₂ CO	O ₂	Ar	CO ₂
77.45		He	CO ₂ CO	CO ₂ H ₂ O		H ₂ O	Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂
83.7		He	CO ₂ CO	CO ₂			Ar	CO ₂ CO		Ar	CO ₂

Les températures T_1 , T_2 et T_3 mesurées au cours de cette expérience sont présentées en figure A6.4.a ci-dessous, alors qu'en figure A6.4.b est présentée la température moyenne définie par $T_m = \frac{T_1 + T_3}{2}$.

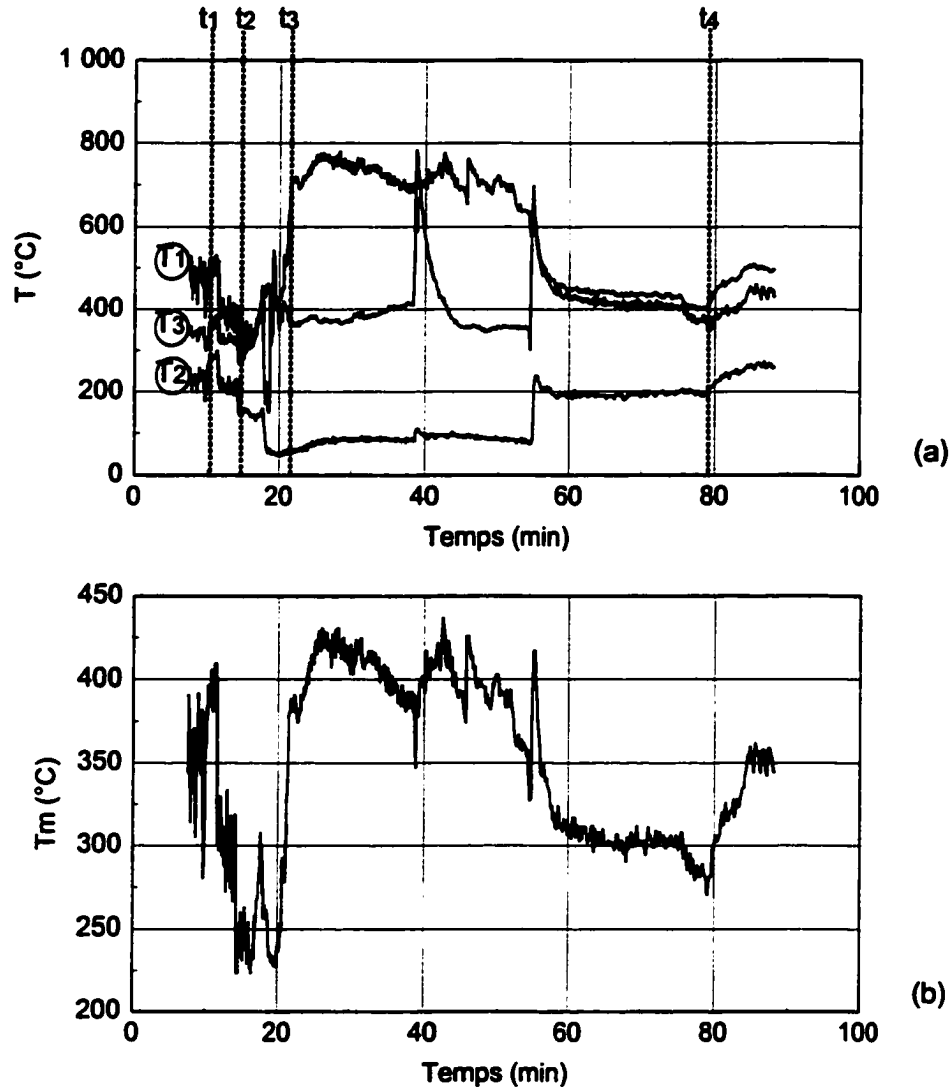


Figure A6.4

(a) évolution de T_1 , T_2 et T_3 au cours de l'expérience C_3 . (b) évolution de la température moyenne T_m au cours de l'expérience C_3 .

$t_1 = 9.9$ min: instant de début d'injection de CO_2

$t_2 = 14$ min: instant du début de la charge en coke

$t_3 = 21.7$ min: instant de fin de charge

$t_4 = 79.7$ min: instant où la puissance et le débit de CO_2 sont doublés.

Bien que les positions des différents thermocouples dans le lit soient proches (voir figure 5.10), des gradients importants apparaissent au cours de l'expérience. Le thermocouple T_2 est proche de la paroi et mesure une température nettement faible à celle mesurée par T_1 et T_3 (écart ≈ 200 °C). L'écart entre les températures mesurées par T_1 et T_3 est important pendant une certaine phase de l'expérience (voir figure A6.4.a). Pendant cette phase, l'augmentation de température ainsi que de l'écart entre les températures mesurées par les différents thermocouples est probablement due à des réactions exothermiques. La présence de l'oxygène détecté en différents instants (tableau A6.1) permet de penser qu'il y a combustion du coke en contact avec l'oxygène provenant de la dévolatilisation du coke ou de la dissociation du CO_2 dans le plasma. L'hydrogène détecté doit aussi provenir de la dévolatilisation du coke qui a lieu en parallèle avec la gazéification par le dioxyde de carbone.

Expérience C₄

Durant l'expérience C_4 , une quantité plus importante de coke est traitée dans le réacteur à une puissance d'alimentation de la torche de 22 kW. Les autres détails opératoires sont donnés dans le tableau 5.10. l'MS a été étalonné pour mesurer les fractions molaires des gaz: Ar, He, CO_2 et CO. Dans la figure A6.5 sont rapportées les fractions molaires des différents gaz dans l'effluent gazeux échantillonné à la sortie du réacteur.

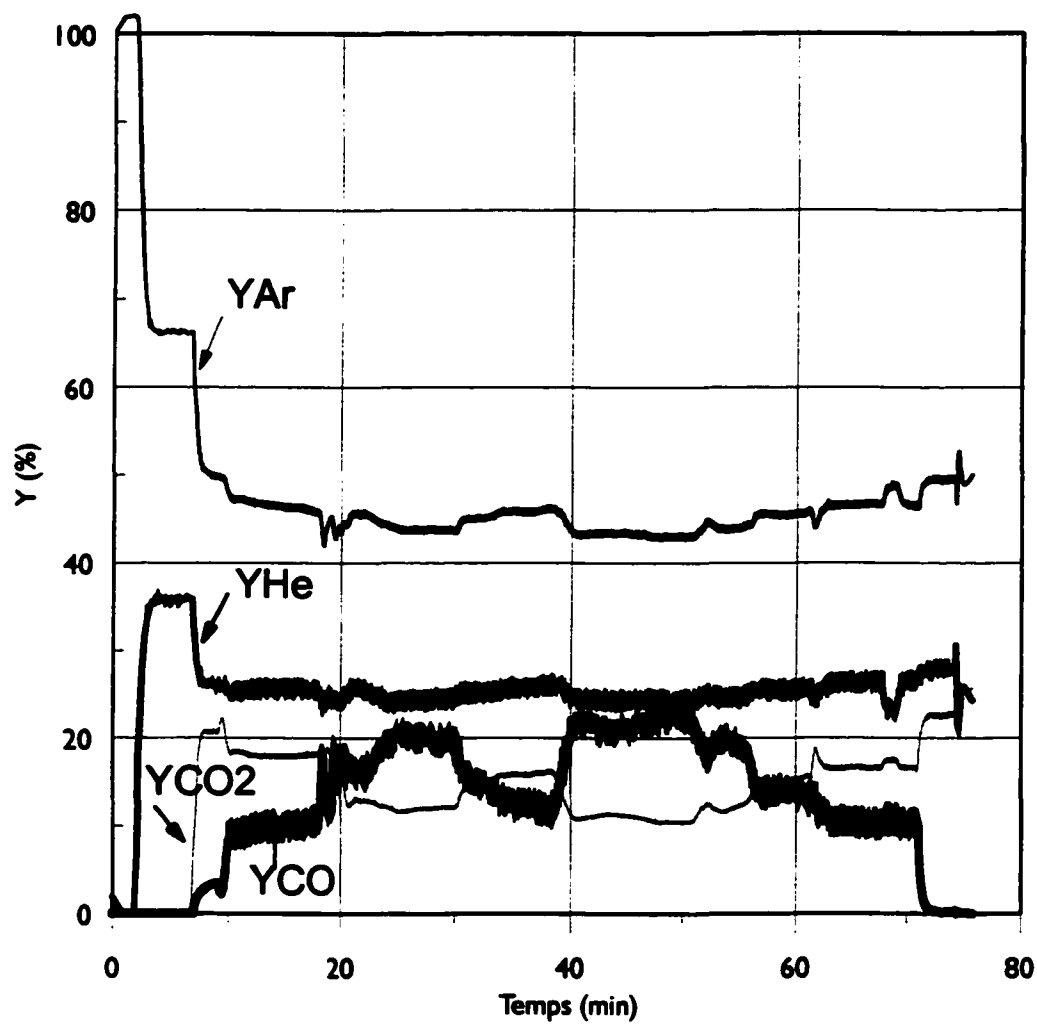


Figure A6.5 Fractions molaires des différents gaz mesurées par l'MS dans l'effluent gazeux à la sortie du réacteur au cours de l'expérience C₄.

La figure A6.6 représente l'évolution du taux de consommation du carbone durant l'expérience C₄.

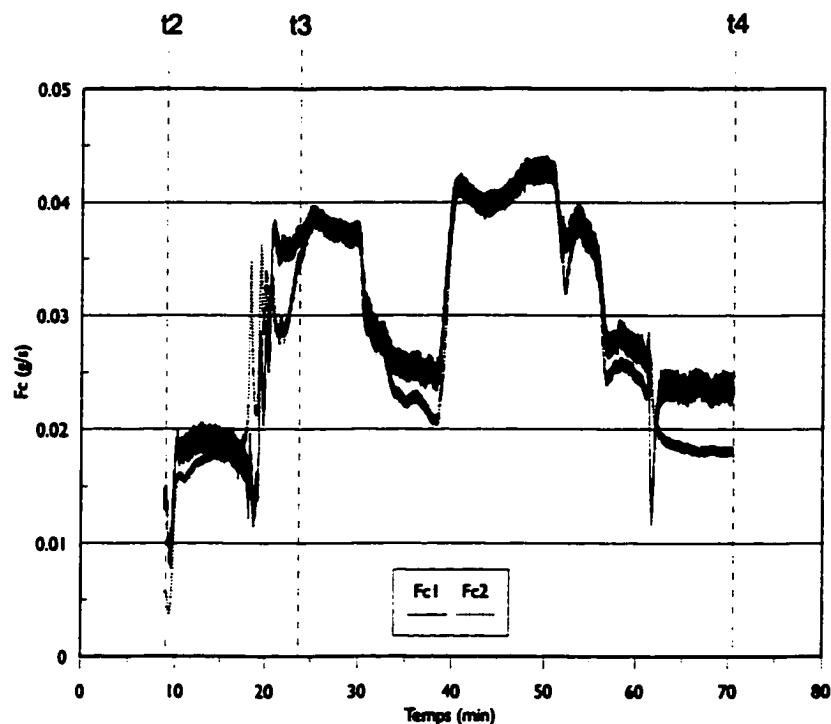


Figure A6.6 Évolution du taux de consommation du carbone durant l'expérience C₄.

Fc (g/s) (Fc1 et Fc2).

t₁ = 6.9 min: début d'injection de CO₂.

t₂ = 8.8 min: début de charge du réacteur en coke de pétrole.

t₃ = 23.3 min: fin de la charge du réacteur en coke de pétrole.

t₄ = 70.5 min: Arrêt de la torche (fin d'expérience).

Au cours de l'expérience C₄, la température dans le lit est mesurée par les thermocouples T₁, T₂ et T₃. L'évolution de la température mesurée par ces trois thermocouples est présentée en figure A6.7 ci dessous.

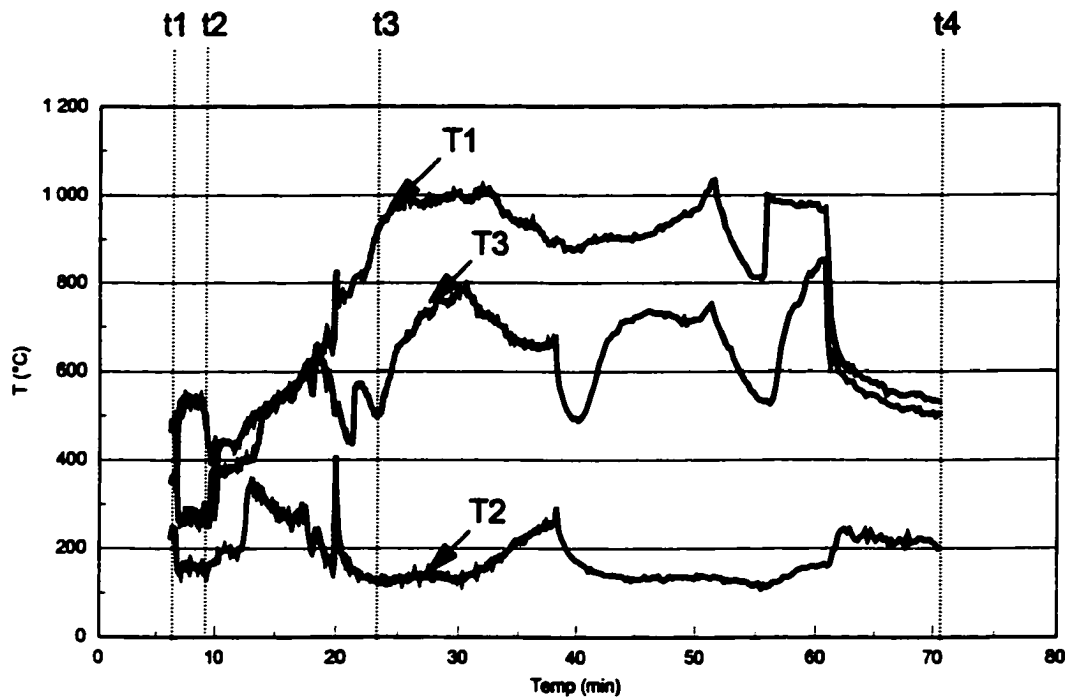


Figure A6.7 Évolution des températures mesurées dans le lit au cours de l'expérience C₄.
Les temps indiqués (t_1 à t_4) sont les mêmes que pour la figure A6.6.

La température T_2 mesurée près de la paroi reste faible alors que les températures T_1 et T_3 atteignent 1000 °C dans certaines phases de l'expérience. Des écarts importants apparaissent aussi entre les températures mesurées par les thermocouples T_1 et T_3 localisés l'un proche de l'autre (voir figure 5.10). Ces écarts ne s'estompent que vers la fin de l'expérience.

L'évolution de la température moyenne du lit représentée par $T_m = \frac{T_1 + T_3}{2}$, ainsi que le taux de consommation de carbone sont représentés dans la même figure (A6.8) afin de voir la correspondance entre les variations de température observées et l'évolution du taux de consommation du carbone F_{c_1} .

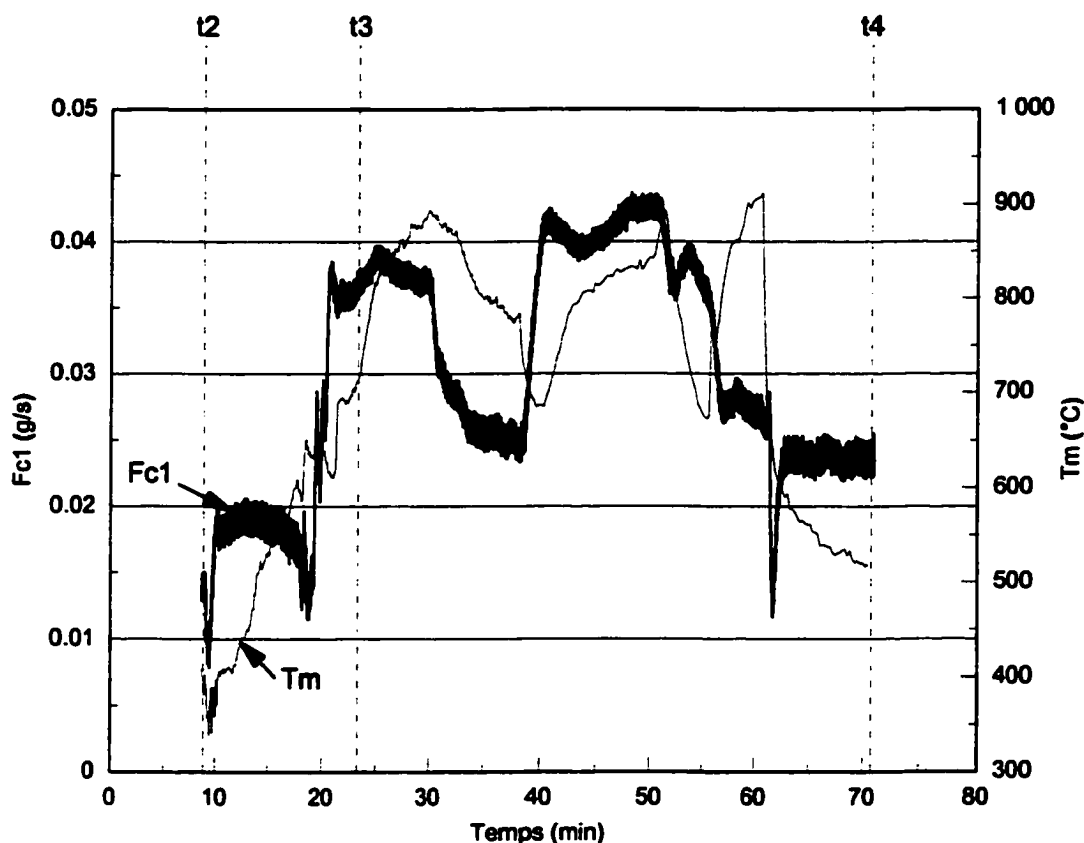


Figure A6.8 Évolution du taux de consommation de carbone F_c et de la température moyenne du lit T_m au cours de l'expérience C_4 . Les temps indiqués (t_2 à t_4) sont les mêmes que pour la figure A6.6.

Le taux de consommation du carbone F_c suit l'évolution de la température moyenne du lit. Lorsque la température augmente, le taux de consommation augmente ce qui conduit à un refroidissement du lit (réaction endothermique). L'augmentation de température est aussi due à un apport d'énergie par la réaction exothermique (combustion $C-O_2$). Dans cette expérience le coke utilisé n'est pas pyrolysé (dévolatilisé) au préalable. L'expérience C_5 , qui suit a été planifiée pour voir la contribution de la pyrolyse à la consommation du coke.

Expérience C_5

À la suite de l'expérience C_4 , une expérience de pyrolyse du coke est planifiée. Dans cette expérience, le débit de CO_2 est remplacé par un débit d'azote afin de travailler dans les mêmes conditions de débit de gaz à l'entrée que l'expérience C_4 . Par ailleurs les autres conditions

opératoires (puissance, charge ...) sont les mêmes que pour l'expérience C_4 . Le spectromètre de masse a été étalonné pour mesurer les fractions molaires des gaz Ar, He, N_2 et H_2 . La Figure A6.9 montre l'évolution des fractions molaires des différents gaz mesurées par l'MS au cours de l'expérience C_5 .

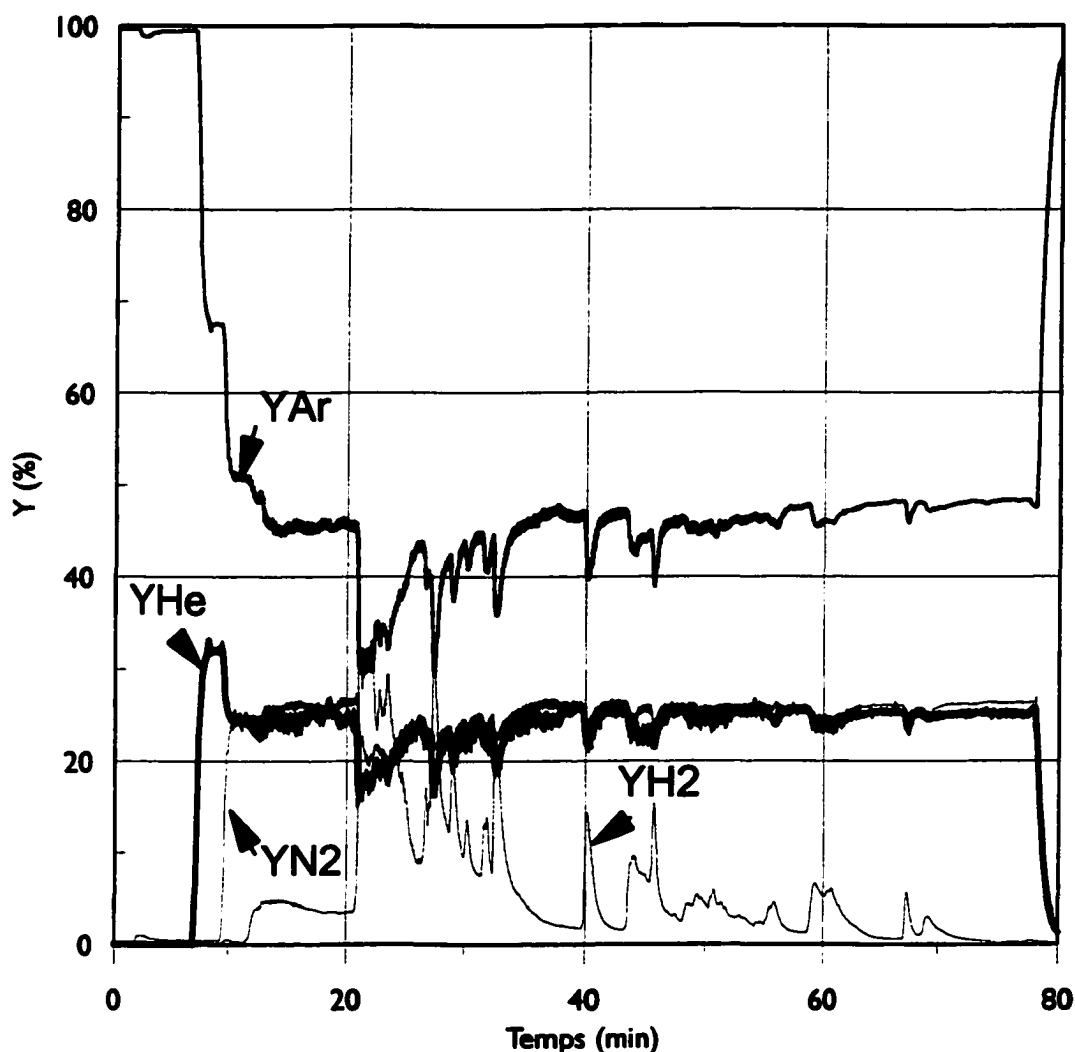


Figure A6.9 Fractions molaires des différents gaz mesurées par l'MS dans l'effluent gazeux à la sortie du réacteur au cours de l'expérience C_5 .

Dans la figure A6.10, sont représentés l'évolution de la température moyenne du lit et de la fraction molaire de H_2 au cours de l'expérience C_5 .

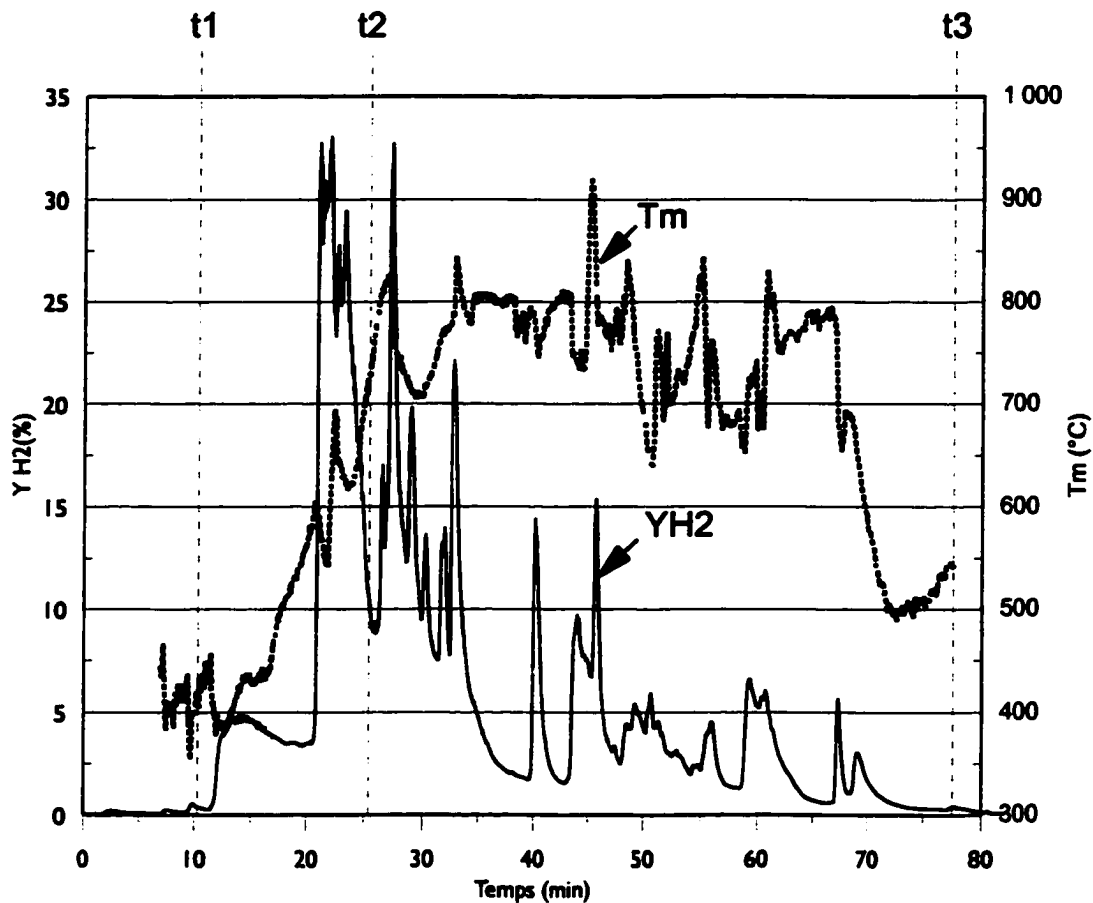


Figure A6.10 Évolution de la fraction molaire d'hydrogène dégagée et de la température moyenne du lit T_m au cours de l'expérience C_5 .

$t_1 = 11.5$ min: début de charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_2 = 26$ min: fin de la charge du réacteur en coke.

$t_3 = 77.5$ min: fin de l'expérience (arrêt de la torche).

La masse d'hydrogène totale dégagée au cours de l'expérience, m_{H_2} , a été calculée à partir de la fraction molaire d'hydrogène mesurée dans l'effluent gazeux à la sortie du réacteur par:

$$m_{H_2}(g) = 2 \dot{n}_{Ar} \int_{t_i}^{t_f} \left(\frac{Y_{H_2}}{Y_{Ar}} \right) dt \quad (A6.2)$$

où \dot{n}_{Ar} est le débit molaire de l'argon à l'entrée du réacteur. t_i et t_f sont respectivement le temps du début de charge du réacteur en coke (t_1) et le temps de fin d'expérience (t_3). La masse d'hydrogène dégagée au cours de l'expérience C_5 , calculée à partir de l'équation (A6.2) est de 16.3 g ce qui correspond à la quantité d'hydrogène contenue dans le coke chargé dans le réacteur au cours de cette expérience. Le coke récupéré de l'expérience C_5 est donc complètement pyrolysé. Ce résultat est aussi confirmé par l'analyse élémentaire effectué dans les échantillons

recupérés après l'expérience C₅ (voire annexe A5-1). La masse de coke consommée au cours de l'expérience obtenue par bilan massique est de 105g ce qui représente environ 50% de la quantité consommée au cours de l'expérience C₄.

Expérience C₆

Le coke utilisé pendant l'expérience C₆ est composé en grande partie (82.5 %) du coke récupéré après l'expérience C₅. Le coke utilisé pendant cette expérience a donc été préalablement pyrolysé. L'expérience est conduite dans des conditions similaires à l'expérience C₄. Le spectromètre de masse a été étalonné pour mesurer les fractions molaires des gaz: Ar, He, CO₂, CO et H₂. La figure A6.11 montre l'évolution des fractions molaires des différents gaz mesurées par l'MS au cours de l'expérience C₆.

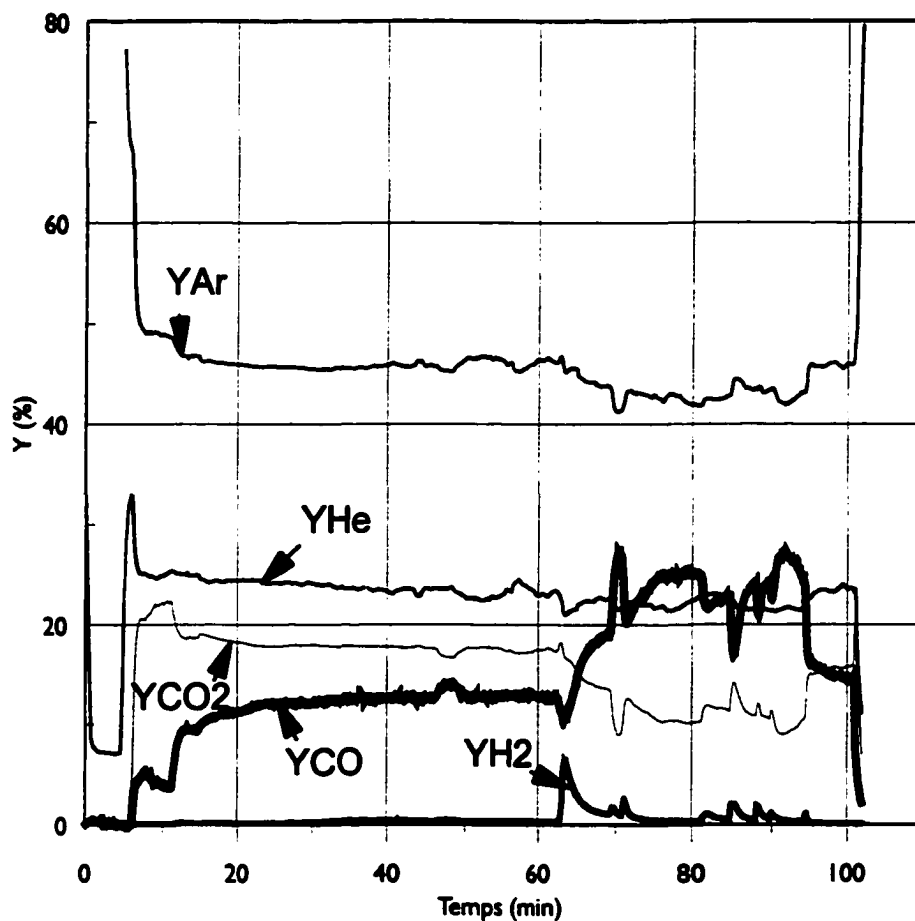


Figure A6.11 Fractions molaires des différents gaz mesurées par l'MS dans l'effluent gazeux à la sortie du réacteur au cours de l'expérience C₆.

La figure A6.12 représente l'évolution du taux de consommation du carbone (F_{c1} et F_{c2}) durant l'expérience C_6 .

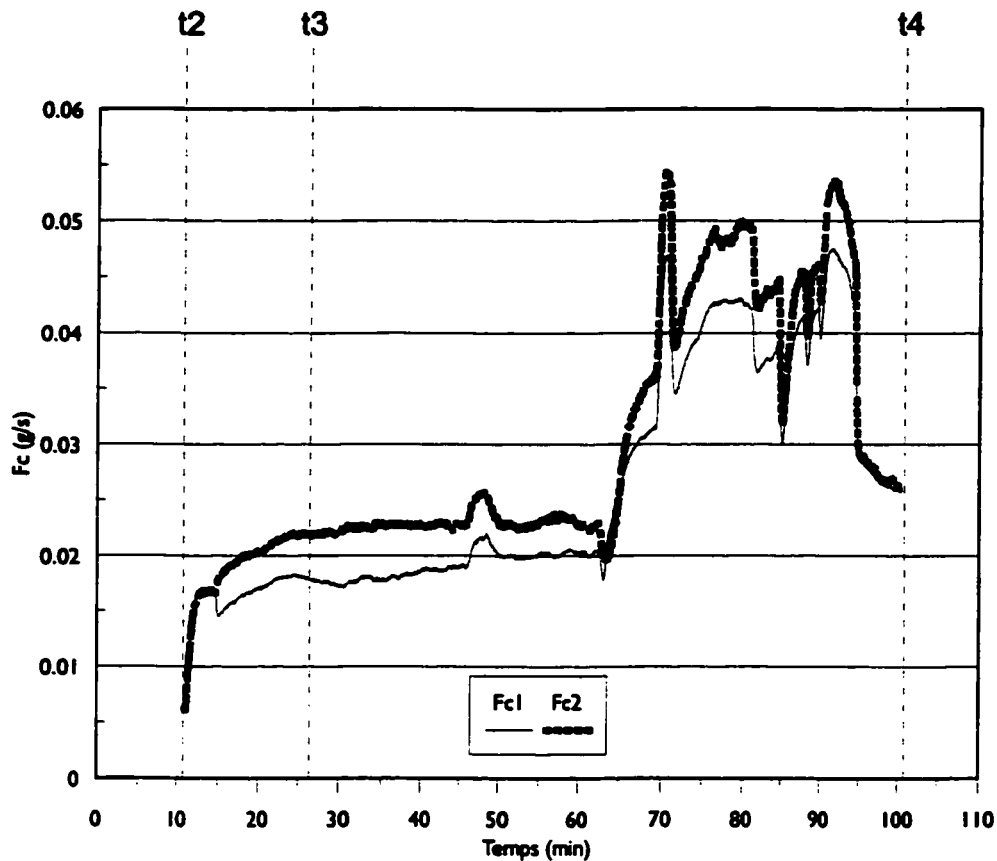


Figure A6.12 Évolution du taux de consommation du carbone durant l'expérience C_6
 F_c (g/s) (F_{c1} et F_{c2}).

$t_1 = 6.3$ min: début d'injection de CO_2 .

$t_2 = 11$ min: début de charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_3 = 26$ min: fin de la charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_4 = 100.5$ min: Arrêt de la torche (fin d'expérience).

L'évolution de la température dans le lit, mesurée par les thermocouples T_1 , T_2 et T_3 , est présentée en figure A6.13 ci dessous et l'évolution de la température moyenne du lit représentée par $T_m = \frac{T_1 + T_3}{2}$, ainsi que le taux de consommation de carbone sont représentés dans la même

figure (figure A6.14) afin de voir la correspondance entre les variations de température observées et l'évolution du taux de consommation du carbone F_{C_1} .

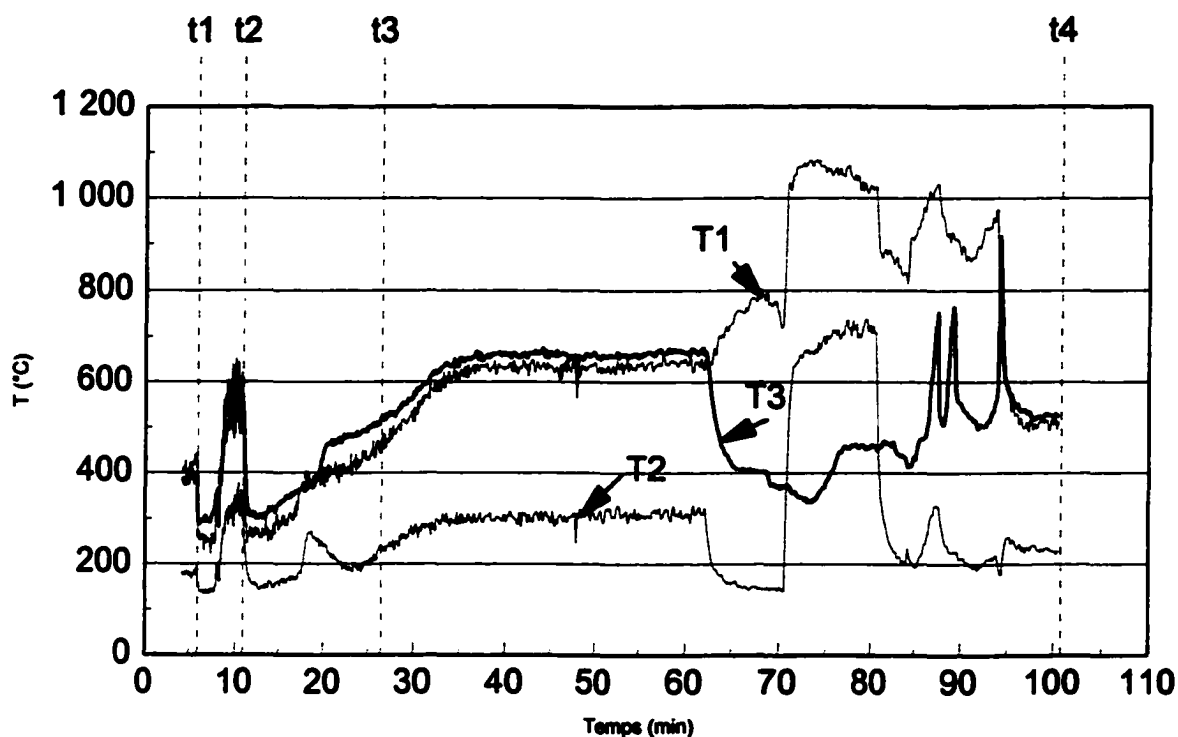


Figure A6.13 Évolution des températures mesurées dans le lit au cours de l'expérience C_6 .

$t_1 = 6.3$ min: début d'injection de CO_2 .

$t_2 = 11$ min: début de charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_3 = 26$ min: fin de la charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_4 = 100.5$ min: Arrêt de la torche (fin d'expérience).

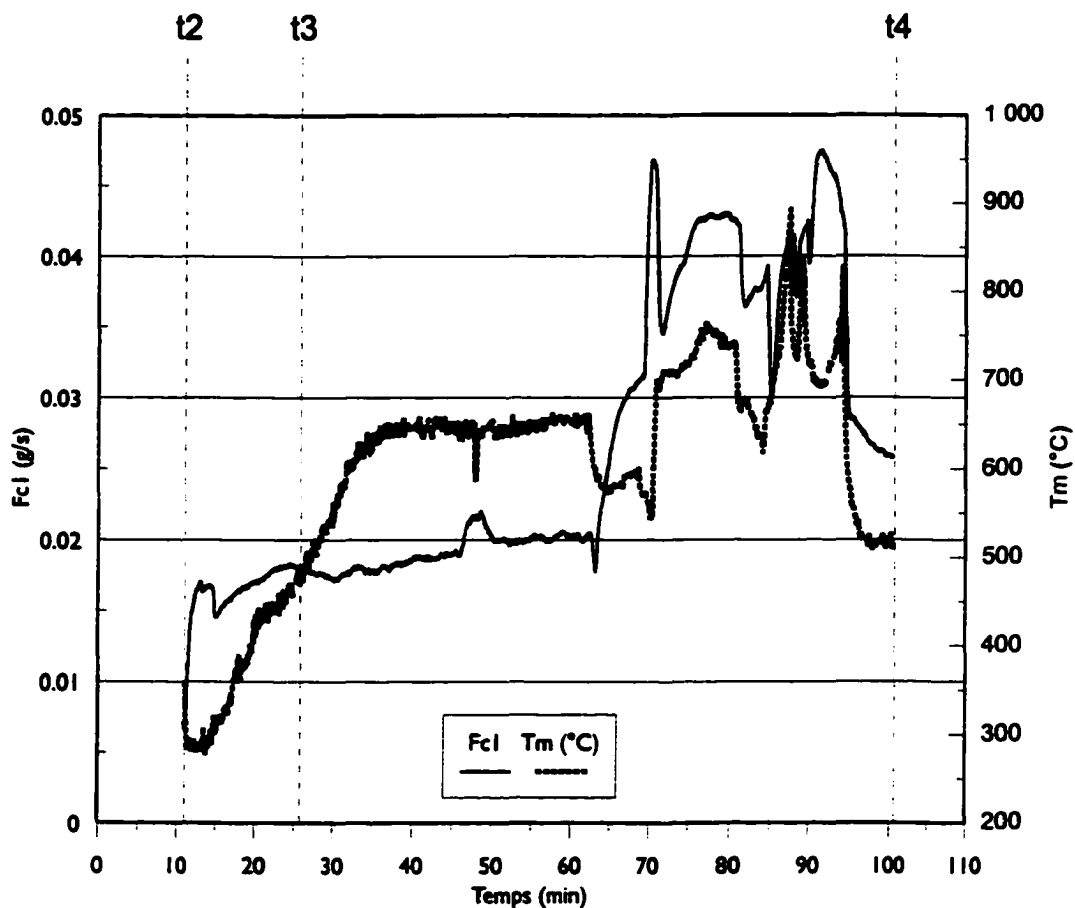


Figure A6.14 Évolution du taux de consommation de carbone F_c et de la température moyenne du lit T_m au cours de l'expérience C_6 . Les temps indiqués (t_2 à t_4) sont les mêmes que pour la figure A6.12.

Comme il a déjà été souligné, la variation du taux de consommation de carbone F_c suit la variation de la température dans le lit. L'allure accidentée de la variation de T_m et de F_c à une certaine étape de l'expérience correspond à une phase où il y a dégagement d'hydrogène comme illustré dans la figure A6.15 où sont représentés la variation de T_m et du taux de dégagement d'hydrogène F_{H_2} calculé à partir des fractions molaires d'hydrogène (Y_{H_2}) et d'argon (Y_{Ar}) mesurées par l'MS dans l'effluent gazeux à la sortie du réacteur.

$$F_{H_2}(g) = 2 \dot{n} e_{Ar} \frac{Y_{H_2}}{Y_{Ar}} \quad (A6.3)$$

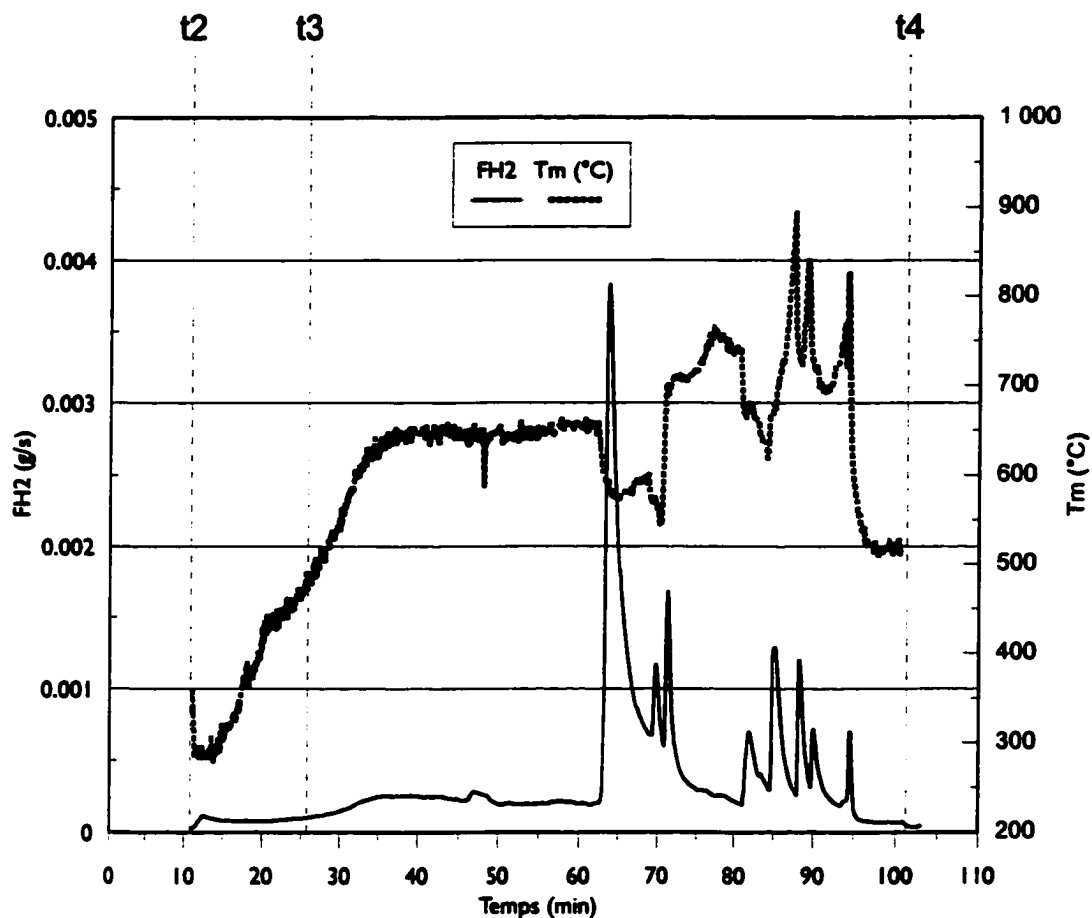


Figure A6.15 Évolution du taux de dégagement de H_2 (F_{H_2}) et de la température moyenne du lit T_m au cours de l'expérience C_6 . Les temps indiqués (t_2 à t_4) sont les mêmes que pour la figure A6.12.

La quantité d'hydrogène totale libérée durant l'expérience a été calculée par intégration du profil F_{H_2} . Elle est de 2g. Cette quantité d'hydrogène correspond exactement à la quantité d'hydrogène contenue dans le coke non pyrolysé inclus dans la charge du réacteur au cours de l'expérience C_6 (17.5 % en masse de coke non pyrolysé). La figure A6.15 montre que le dégagement d'hydrogène s'accompagne d'une augmentation de température dans le lit ce qui permet de penser à l'existence de réactions exothermiques dans cette phase de l'expérience. Cependant le fait que l'hydrogène dégagé ne participe pas à une réaction quelconque permet d'émettre l'hypothèse que le dégagement d'hydrogène s'accompagne d'une restructuration du coke à l'échelle moléculaire et création de sites actifs plus favorables à la réaction $C-O_2$.

(combustion du carbone). Cette hypothèse est en accord avec l'augmentation simultanée de la température et du taux de consommation du carbone observés dans cette phase.

Expériences avec le coke fin ($d_p \leq 425\mu m$)

Les quatre expériences faites avec le coke fin ont surtout été marquées par un taux d'élutriation excessif. Dans le tableau A6.2 sont données les masses de coke recueillies dans les différents éléments: réacteur, collecteur et filtre au cours de ces expériences.

TABLEAU A6.2 DISTRIBUTION DU COKE ENTRE LES DIFFÉRENTS ÉLÉMENTS DU SYSTÈME: RÉACTEUR, COLLECTEUR ET FILTRE AU COURS DES EXPÉRIENCES AVEC LE COKE FIN.

Exp. label	Durée (min)	Charge initiale (g)	Masse recueillie dans le collecteur (g)	Masse recueillie sur le filtre (g)	Masse recueillie dans le réacteur (g)	Coke consommé (par différence) (g)
C ₇	36	750	288	--	373	89
C ₈	37	750	472	--	216	62
C ₉	34	1 500	963	12	409	116
C ₁₀	32	1 500	1 288	25	99	88

À cause de l'élutriation excessive au cours de ces expériences, la charge de coke effectivement traitée dans le réacteur est faible. Le thermocouple T₁, qui est le seul à être utilisé au cours de ces expériences, ne mesure pas la température du solide. En effet d'après la quantité de solide recueillie dans le réacteur en fin de ces expériences, le thermocouple ne plonge pas dans le lit et c'est la température du gaz qui est mesurée. Pour les mêmes raisons, la charge effective de coke dans le réacteur faible, le taux de consommation de carbone au cours de ces expériences est faible. Au cours de ces expériences, l'MS a été étalonné pour mesurer les fractions molaires des gaz: Ar, He, CO₂, CO et H₂. Cependant aucun dégagement de H₂ n'a été observé. Les résultats de l'évolution du taux de consommation de carbone au cours de ces expériences sont résumés ci après.

Expérience C₇

L'évolution de la température T₁, ainsi que du taux de consommation de carbone sont représentés dans la même figure (figure A6.16).

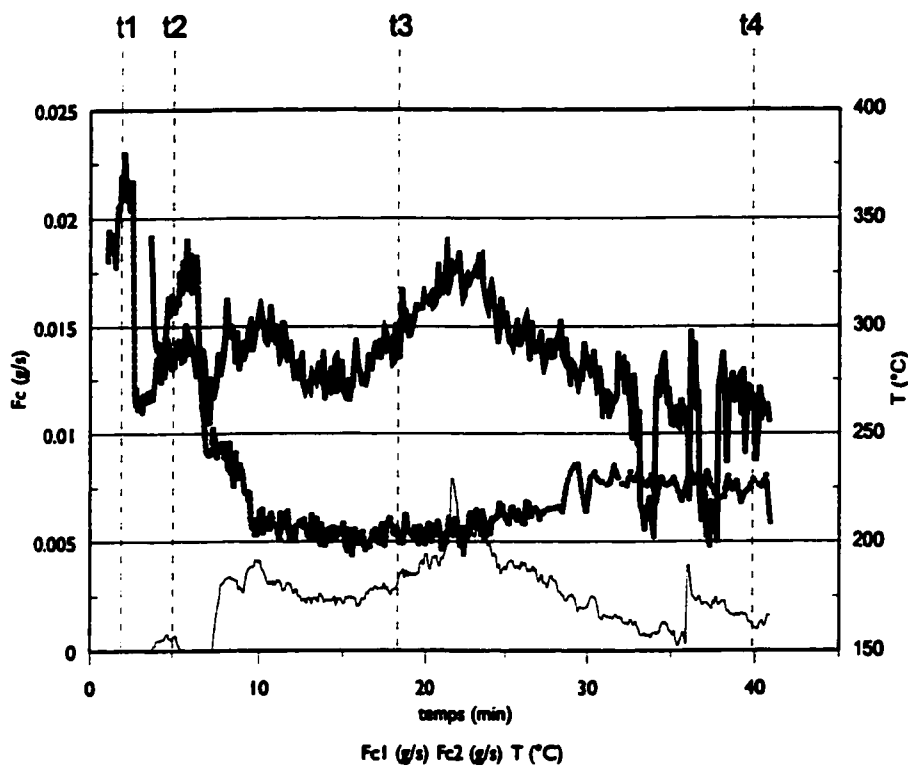


Figure A6.16 Évolution du taux de consommation du carbone (F_{c1} et F_{c2}) ainsi que de la température T_1 au cours de l'expérience C_7 .

$t_1 = 3.7$ min: début d'injection de CO_2 .

$t_2 = 6.4$ min: début de charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_3 = 18.5$ min: fin de la charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_4 = 40.9$ min: Arrêt de la torche (fin d'expérience).

La température mesurée par le thermocouple T_1 est faible. D'après la charge recueillie dans le réacteur en fin d'expérience, le thermocouple est en dehors du lit et mesure donc la température du gaz. Les taux de consommation de carbone F_{c1} et F_{c2} sont faibles comparativement aux expériences faites avec le coke grossier dans les mêmes conditions opératoires (expérience C_2). L'écart entre F_{c1} (calculé à partir de la fraction molaire de CO_2) et F_{c2} (calculé à partir de la fraction molaire de CO) est important: $F_{c1} \geq F_{c2}$. Cependant, vu que la concentration de CO mesurée en sortie du réacteur est faible, l'erreur commise sur la mesure de F_{c2} est importante.

Expérience C₈

Les conditions opératoires de l'expérience C₈ sont les mêmes que pour C₇. La seule différence est que le gaz secondaire CO₂ est injecté par la position d'injection à la base du cône (point d'injection N°2 , figure 5.9). L'évolution du taux de consommation du carbone ainsi que de la température mesurée par le thermocouple T₁ au cours de cette expérience sont présentés en figure A6.17.

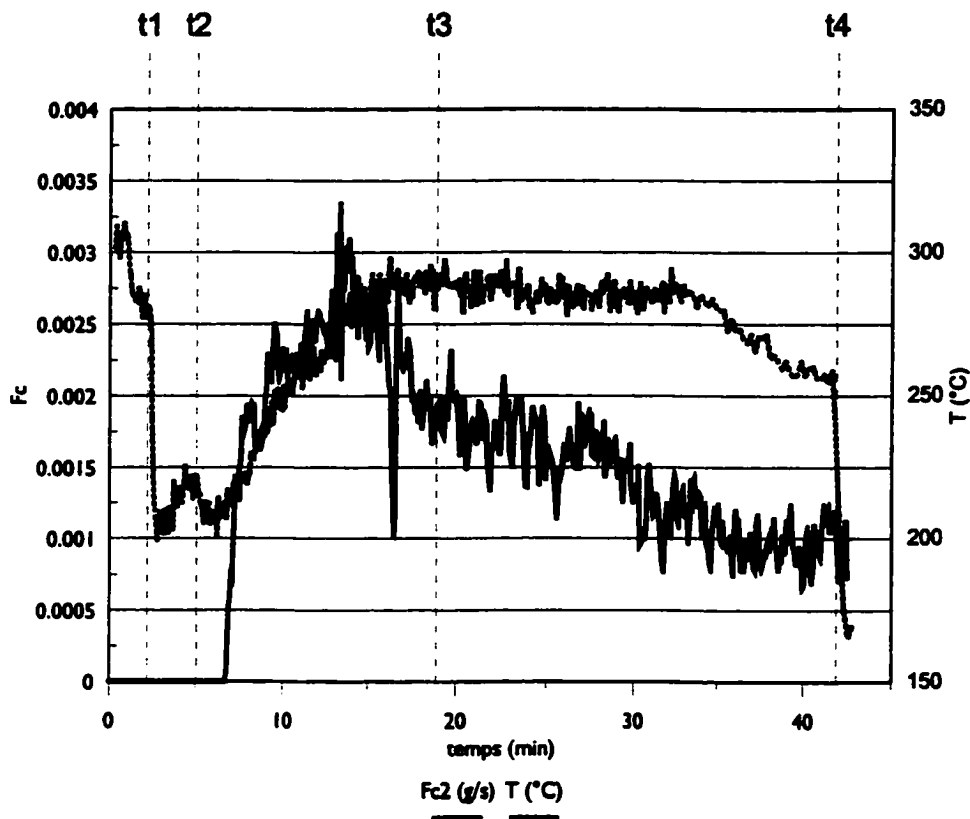


Figure A6.17 Évolution du taux de consommation du carbone (Fc₂) ainsi que de la température T₁ au cours de l'expérience C₈.

t₁ = 2.3 min: début d'injection de CO₂.

t₂ = 5 min: début de charge du réacteur en coke de pétrole.

t₃ = 18 min: fin de la charge du réacteur en coke de pétrole.

t₄ = 41.5 min: Arrêt de la torche (fin d'expérience).

Le taux de consommation du carbone est faible durant cette expérience. Une différence importante avec le taux mesuré pendant l'expérience C₇ existe (32%). Ceci montre que le niveau d'injection du CO₂ a une grande importance sur le taux de réaction. La différence entre les taux de consommation enregistrés pendant les expériences C₇ et C₈ est due à la contribution du CO₂

dissocié dans le plasma qui est plus important dans le cas de l'expérience C₇ où l'injection est faite à la sortie de la buse. L'incertitude sur les mesures de concentration est importante. Il en résulte que le taux de consommation de carbone calculé à partir des fractions molaires de CO₂ à l'entrée et à la sortie du réacteur est négatif ($F_{c1} \lesssim 0$) et n'est pas présenté sur la figure A6.17.

Expérience C₉

Dans l'expérience C₉, la quantité de coke initialement chargée dans le réacteur est le double par rapport aux expériences C₇ et C₈. La puissance d'alimentation de la torche a aussi été doublée, elle est de 22 kW pour cette expérience. L'évolution du taux de consommation du carbone ainsi que de la température mesurée par le thermocouple T₁ au cours de cette expérience sont présentés en figure A6.18.

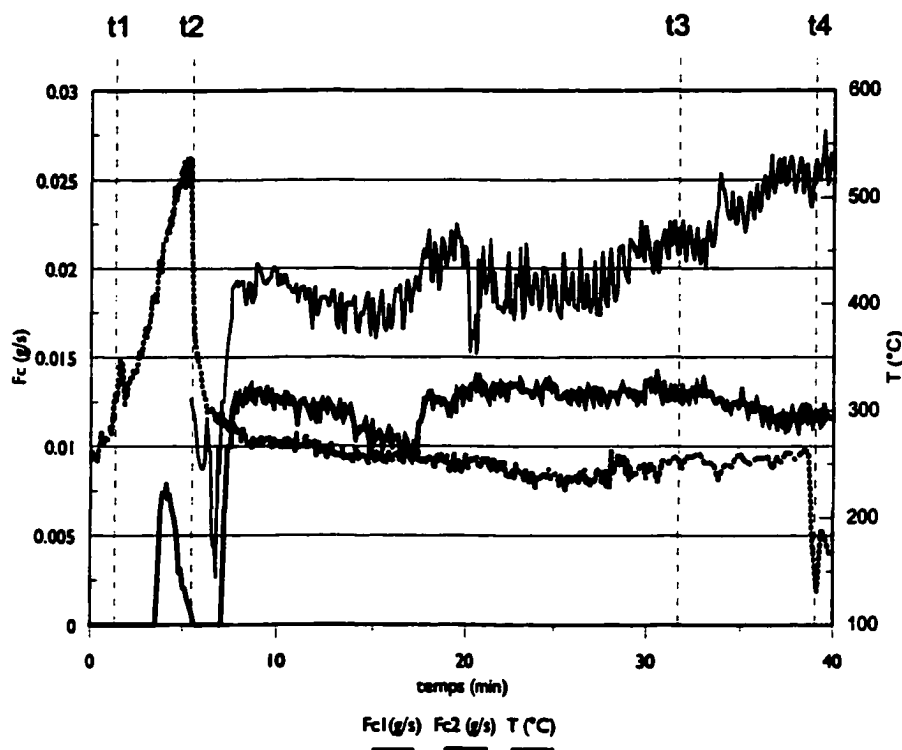


Figure A6.18 Évolution du taux de consommation du carbone (F_{c1} et F_{c2}) ainsi que de la température T₁ au cours de l'expérience C₉.

$t_1 = 1.2$ min: début d'injection de CO₂.

$t_2 = 5.4$ min: début de charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_3 = 32$ min: fin de la charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_4 = 39$ min: Arrêt de la torche (fin d'expérience).

Il existe un écart notable entre les taux de carbone consommé calculé en utilisant les fractions molaires de CO_2 (F_{C1}) et en utilisant la fraction molaire de CO (F_{C2}). Cet écart comme souligné précédemment est dû aux incertitudes sur la mesure de la fraction molaire de CO faible dans ce cas là.

Expérience C_{10}

L'expérience C_{10} est faite dans les mêmes conditions de puissance et de charge solide que l'expérience C_9 . Dans cette expérience, le débit de gaz secondaire CO_2 a été augmenté à 20 SLPM au lieu de 10 SLPM dans le cas de C_9 .

L'évolution du taux de consommation du carbone ainsi que de la température mesurée par le thermocouple T_1 au cours de cette expérience sont présentés en figure A6.19.

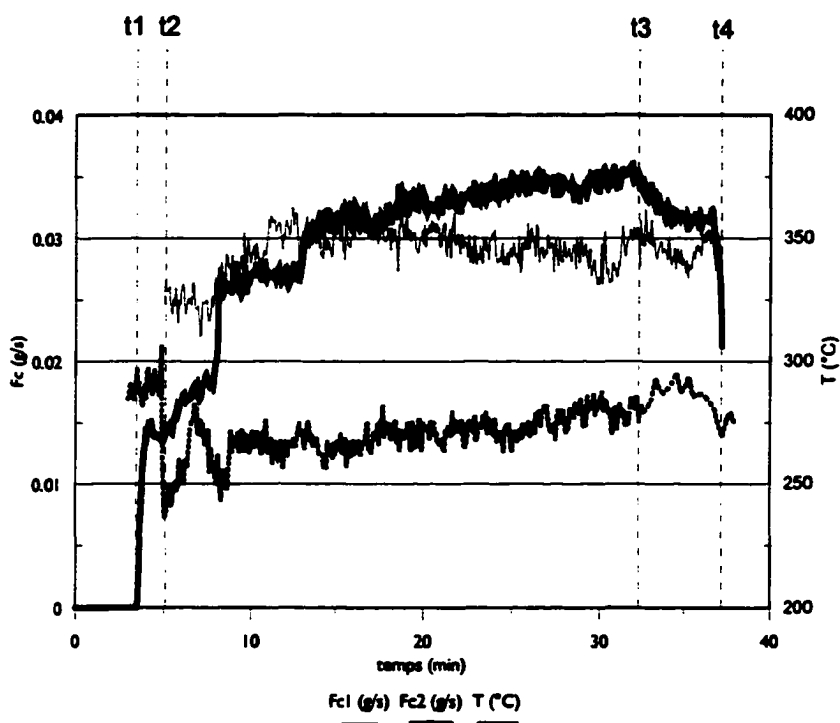


Figure A6.19 Évolution du taux de consommation du carbone (F_{C1} et F_{C2}) ainsi que de la température T_1 au cours de l'expérience C_{10} .

$t_1 = 3.6$ min: début d'injection de CO_2 .

$t_2 = 5$ min: début de charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_3 = 33$ min: fin de la charge du réacteur en coke de pétrole.

$t_4 = 37.5$ min: Arrêt de la torche (fin d'expérience).

La quantité de carbone consommé au cours de cette expérience est inférieure à celle consommée au cours de l'expérience C_{10} ce qui est en contradiction avec l'effet d'augmentation du débit de gaz réactif. Ceci s'explique par le taux d'élutriation plus important enregistré au cours de l'expérience C_{10} en comparaison avec celui enregistré au cours de l'expérience C_9 (voire tableau A6.2 ci avant).

Annexe A7

MESURE DE SURFACE SPÉCIFIQUE

Les mesures de surface spécifique S_p (m^2/g) dans les échantillons recueillis en fin d'expériences ainsi que dans l'échantillon initial de coke ont été faites par la méthode BET (basée sur l'adsorption et la désorption de l'azote). L'appareil utilisé est *Micromeritics flowsorb II 2300*.

Les surfaces spécifiques mesurées sont rapportées dans la figure A7.1 en fonction du diamètre de particules dans les échantillons. Dans la même figure sont rapportées les courbes $S_p = f(d_p)$. Ces courbes représentent le calcul de la surface spécifique de particules sphériques de différents diamètres contenant des pores sphériques espacés de $10\ \mu\text{m}$. Ce calcul a été entrepris afin de déterminer la contribution, de la surface externe des particules ainsi que de la structure en onion des particules de coke utilisées, à la surface spécifique totale mesurée dans les échantillons. La structure en onion est caractéristique du procédé d'obtention du coke utilisé dans cette étude "*fluid bed coking*". Dans ce procédé, des particules fines de coke ($d_p \approx 100\ \mu\text{m}$) sont maintenues à l'état fluidisé avec de la vapeur d'eau à des températures de l'ordre de $600\ ^\circ\text{C}$. Les résidus lourds de pétrole sont injectés dans le lit et subissent une décarbonation qui se traduit par la formation de produits pétroliers légers et la déposition de couches de coke sur les particules de coke initial. Cette déposition en couches successives est responsable de la structure des particules de coke avec une forme de couches en onion bâties sur un noyau de coke plus dense. Les observations au MEB ont permis de vérifier cette structure en onion avec des couches pseudo sphériques espacées d'environ $10\ \mu\text{m}$ bâties sur un noyau de l'ordre de $100\ \mu\text{m}$. Les courbes dans la figure A7.1 portent des indices qui réfèrent au nombre de couches à partir de la surface externe de la particule de diamètre d_p incluses dans le calcul de la surface spécifique. La courbe d'indice $i = 0$ représente la contribution de la surface externe à la surface spécifique (nombre de couches considérées égal à 0).

La surface spécifique mesurée dans le coke brut ($841\ \mu\text{m} \leq d_p \leq 3350\ \mu\text{m}$) est de $0.26\ \text{m}^2/\text{g}$. Le calcul de la surface spécifique en considérant la forme en onion avec des pores sphériques espacés de $10\ \mu\text{m}$ montre que la contribution de cette structure ne dépasse pas $0.1\ \text{m}^2$ dans les

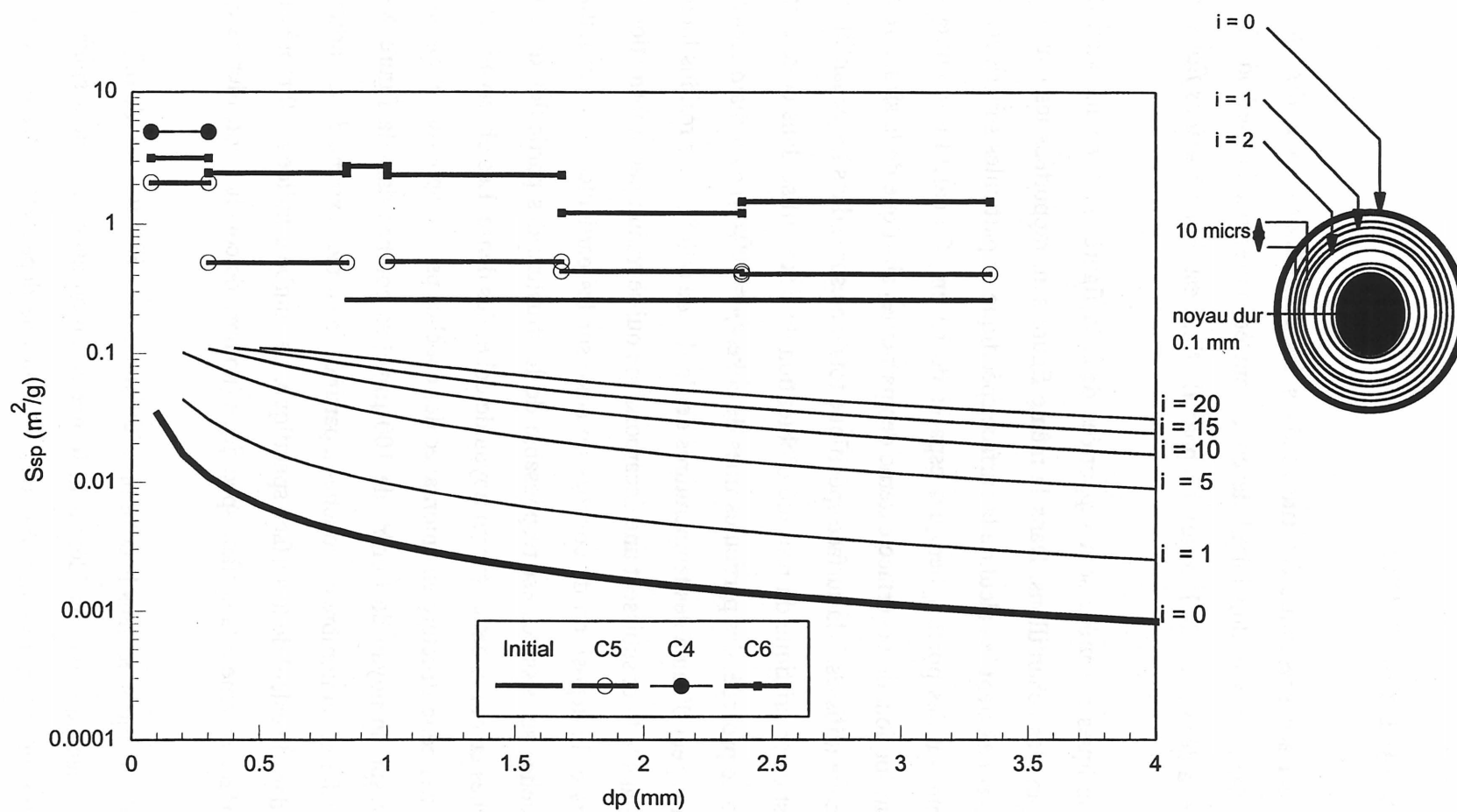


Figure A7.1 Surface spécifique mesurée dans les échantillons et surface spécifique calculée en considérant la structure en onion montrée dans le schéma.

meilleurs des cas, soit 38.5% de la surface spécifique totale. Le coke admet donc une structure poreuse plus importante que celle générée par la structure en onion.

Les mesures montrent que la surface spécifique augmente en général lorsque la taille des particules diminue. Ceci est en accord avec les taux de conversion mesurés dans les différents échantillons recueillis en fin d'expériences (Annexe A5-1). La surface spécifique après pyrolyse (Expérience C₅) dans les échantillons tels que $300\mu m \leq d_p \leq 3350\mu m$ est de 0.5 m²/g, soit le double de la surface spécifique initiale. Après gazéification par CO₂, la surface spécifique atteint 1.5 à 2.7 m²/g pour les échantillons telles que $300\mu m \leq d_p \leq 3350\mu m$ (Expérience C₆) soit 8 à 14 fois la surface spécifique dans l'échantillon de coke non gazéifié (initial). Pour les échantillons tels que $d_p \leq 300\mu m$ la surface spécifique mesurée est de 2 m²/g pour l'échantillon pyrolysé (Expérience C₅) et varie entre 3 m²/g (Expérience C₆) et 5 m²/g (expérience C₄) dans le cas des échantillons gazéifiés. Une comparaison des surfaces spécifiques dans les échantillons pyrolysés et gazéifiés montre que dans les échantillons gazéifiés, la surface spécifique est de 1.5 à 5 fois la surface spécifique dans les échantillons pyrolysés.

Annexe A8

CALCUL DE L'ORDRE DE LA RÉACTION

Pour déterminer l'ordre de réaction à partir des résultats des essais effectués, la méthode basée sur les taux de réaction initiaux décrite notamment dans la référence [FOGLER, 1992], a été suivie. Le taux initial de réaction R_{A0} est exprimé en fonction de la concentration initiale du réactif C_{A0} par:

$$-R_{A0} = kC_{A0}^n \quad (\text{A8.1})$$

où k est la constante de vitesse et n l'ordre de réaction. La méthode consiste à tracer la droite :

$$\ln(-R_{A0}) = \ln(k) + n \ln(C_{A0}) \quad (\text{A8.2})$$

La pente de la droite est l'ordre de réaction n .

Dans la plupart des essais effectués, le débit volumique de CO_2 utilisé est 10 SLPM. Un débit de CO_2 de 20 SLPM a cependant été utilisé en fin d'expérience C_3 et pendant l'expérience C_{10} . Les expériences avec des débits de CO_2 initiaux différents ont été analysées de façon à appliquer l'équation A8.2 pour déterminer l'ordre de la réaction C- CO_2 . La figure A8.1 représente $\ln(-R_{A0})$ en fonction de $\ln(C_{A0})$.

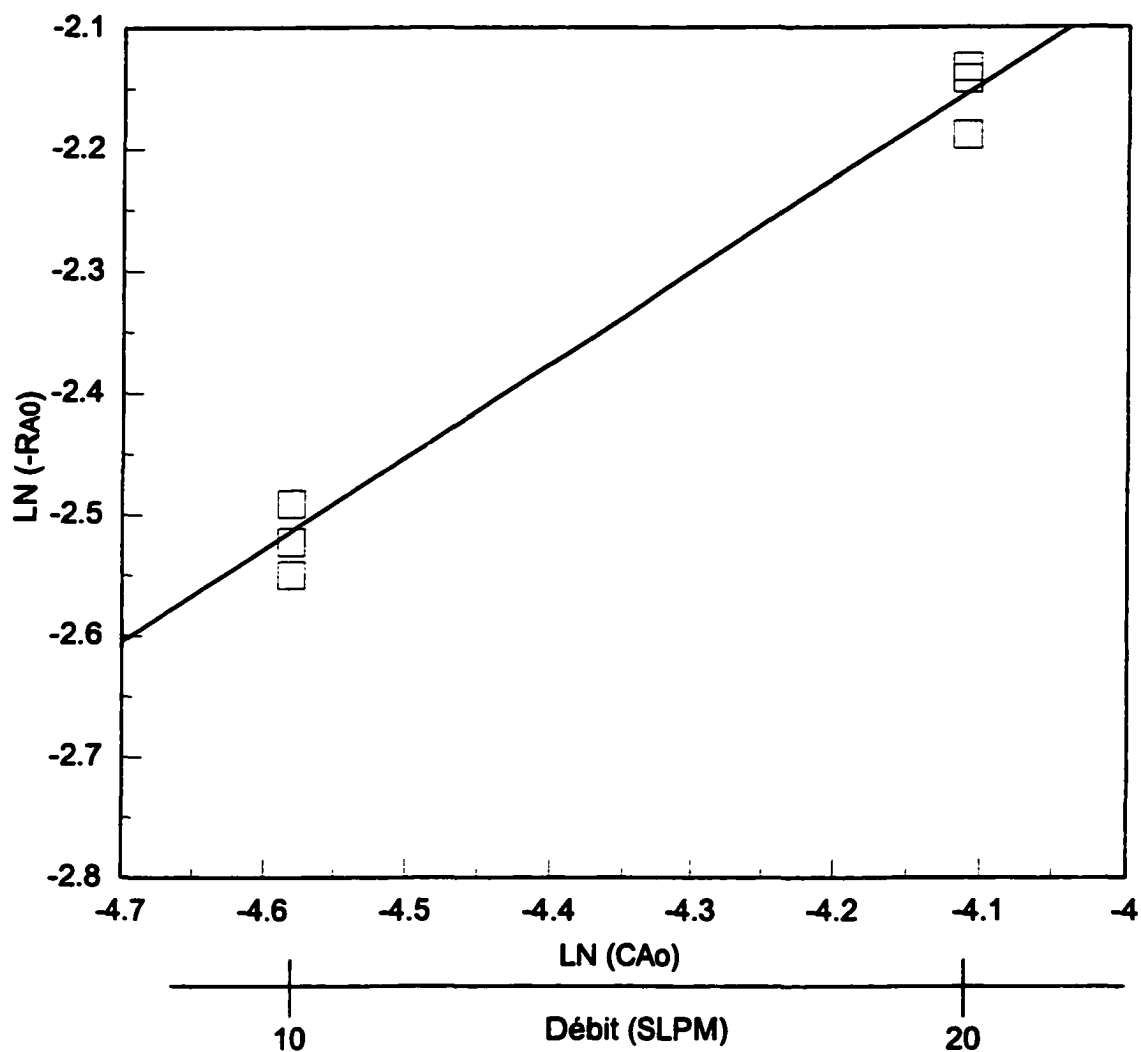


Figure A8.1 $\ln(-R_A)$ en fonction de $\ln(C_{A0})$ pour la détermination de l'ordre de la réaction C-CO₂.

Les résultats d'analyse de régression linéaire, obtenue sur les 7 points de mesure utilisés, montrent que la courbe est linéaire avec un coefficient de régression R^2 de 0.98. L'ordre de réaction (pente de la droite) est:

$$n = 0.76 \pm 0.05$$

Annexe A9

CONDITIONS THERMODYNAMIQUES DES EXPÉRIENCES DE GAZÉIFICATION

La composition, à l'équilibre, du gaz injecté à la base du réacteur (Ar, He, CO₂), a été calculée en fonction de la température à l'aide du logiciel de calcul d'équilibre thermodynamique *FACTWIN*. La figure A9.1 montre la fraction molaire des gaz présents à différentes températures dans le cas du mélange de composition molaire à 298 K: 50 % Ar, 25%He et 25% CO₂.

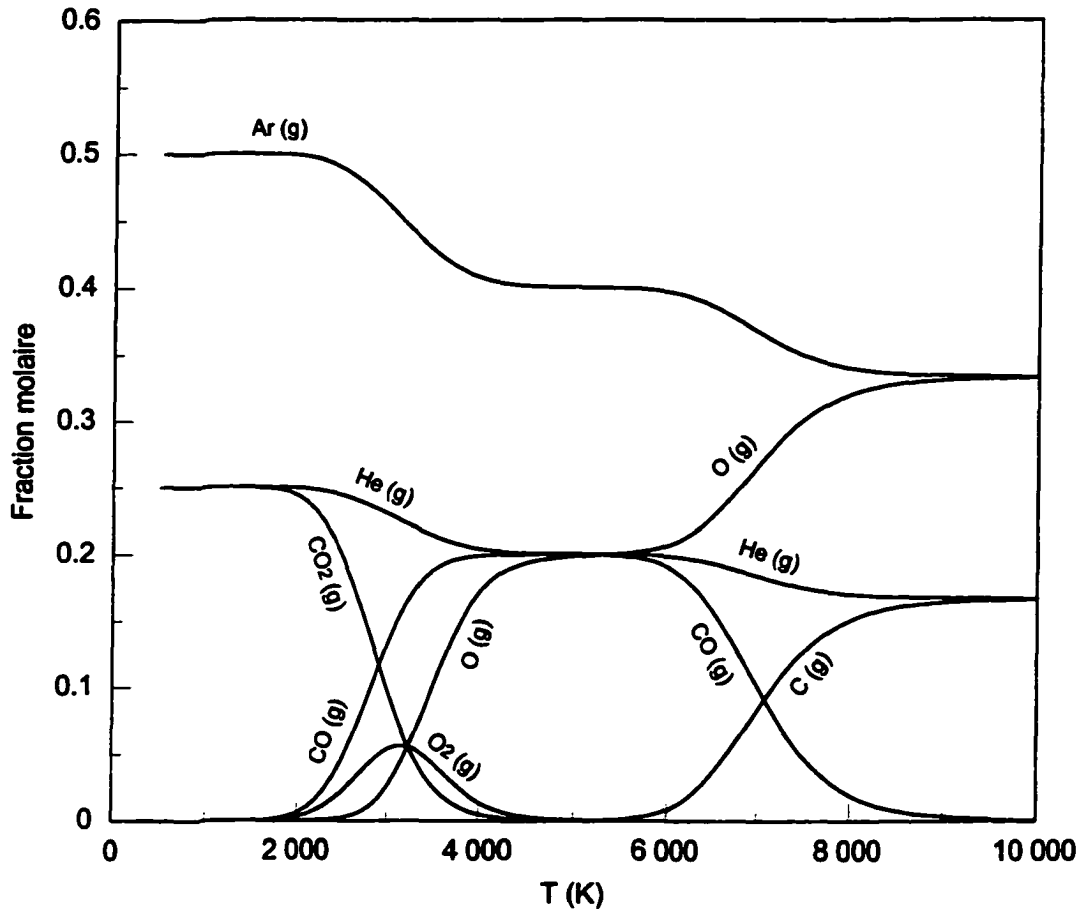


Figure A9.1 Composition à l'équilibre, à différentes températures, du mélange de composition molaire à 298K: 50% Ar, 25% He et 25% CO₂. Pression totale 1 atm.

La figure A9.1 montre que le CO₂ commence à se dissocier à partir de 2000K. Pour $2000K \leq T \leq 4500K$, les deux réactions:





Sont présentes. Pour $4500K \leq T \leq 6000K$, seule la réaction (A9.2) existe et l'oxygène est présent sous forme atomique. Au delà de 6000K, le CO est décomposé en carbone et oxygène atomique.

Au cours des expériences effectuées, la température enthalpique du plasma à la sortie de l'anode, calculée en tenant compte du CO_2 injecté et supposé en équilibre avec les autres gaz (Ar, He), est telle que $3400K \leq T_{gi} \leq 6900K$. On s'attend donc à ce que les deux réactions (A9.1) et (A9.2) soient présentes. À 3000K, 60% de CO_2 injecté dans le plasma est dissocié et à 4500K tout le CO_2 est dissocié.

Le calcul de la composition à l'équilibre en fonction de la température, pour une mixture chimique tenant compte du coke par sa composition élémentaire (cendres exclus) et du mélange gazeux injecté à l'entrée du réacteur, a aussi été fait à l'aide du logiciel *FATWIN*. La figure A9.2 montre la composition de la phase gazeuse à l'équilibre en fonction de la température.

La fraction de CO dégagée par la réaction $C + CO_2 = 2 CO$ commence à être appréciable à partir de $T = 700K$. Pour $T > 1200K$, la réaction est totale dans le sens de dégagement de CO et la fraction molaire de CO dégagée ne dépend plus de la température. Pour $700K \leq T \leq 1700K$, l'hydrogène contenu dans le coke est dégagé sous forme H_2 et au delà de 1700K, l'hydrogène atomique est aussi présent. Le soufre dans l'échantillon peut être éliminé sous plusieurs formes, les courbes d'équilibre montrent que les formes dominantes sont H_2S à basses températures et CS ou CS_2 à températures plus élevées.

Figure A9.2 Composition d'équilibre, à différentes températures et à $P = 1$ atm, de la phase gazeuse du système: coke + Ar + He + CO₂. Composition molaire du gaz à l'entrée (50% Ar, 25% He, 25% CO₂).

Annexe A10

CONDITIONS THERMIQUES DES EXPÉRIENCES DE GAZÉIFICATION

L'enthalpie spécifique du jet de plasma à la sortie de l'anode a été calculée pour chaque expérience connaissant le débit massique total du gaz et la puissance thermique véhiculée par le jet à la sortie de l'anode P_a . ($h = \frac{P_a}{\dot{m}_g}$). La fonction $h(T)$ a été calculée, à partir de données thermodynamiques des gaz utilisés, à l'aide du logiciel de calcul d'équilibre *Factwin*. La température enthalpique moyenne du jet de plasma à la sortie de l'anode a été ensuite déduite de la courbe $h(T)$. Un exemple de la courbe $h = f(T)$, pour le cas des expériences où un débit de gaz CO_2 de 10 SLPM a été utilisé, est présenté en figure A10.1.

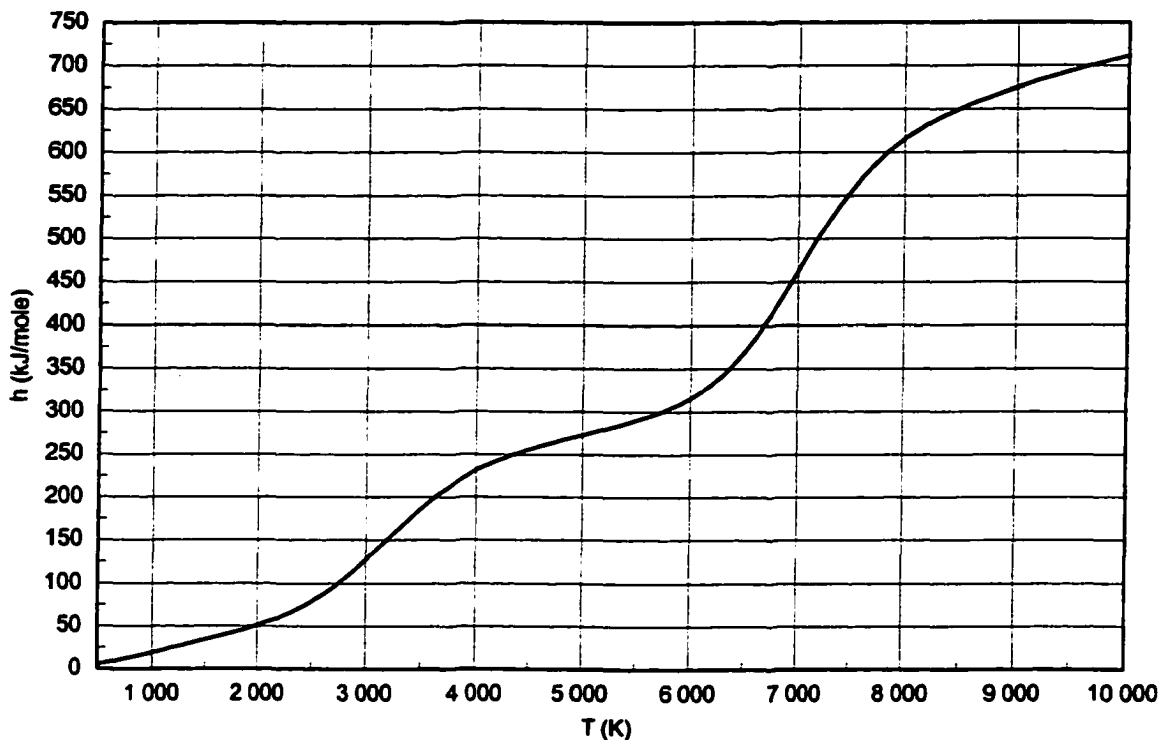


Figure A10.1 Variation de l'enthalpie spécifique en fonction de la température d'un mélange de gaz de composition molaire à 298K: 50% Ar, 25% He, 25% CO_2 .

Pour avoir une idée de la température moyenne du lit, le modèle établi au chapitre 3 pour le calcul de la température moyenne du lit, tenant compte des pertes thermiques a été utilisé. L'équation 3.36 est modifiée pour tenir compte de l'énergie consommée par la réaction C-CO₂. Ainsi pour estimer la température moyenne du lit en régime permanent, l'équation A10.1 est utilisée.

$$T_b = T_a + \frac{\lambda'}{\delta}(T_{gi} - T_a) \quad (\text{A10.1})$$

avec

$$\lambda' = \lambda - \frac{F_c \Delta H}{m_b C_{ps}(T_{gi} - T_a)} \quad (\text{A10.2})$$

F_c est le taux de consommation moyen du carbone (kg/s), ΔH est l'enthalpie de la réaction C-CO₂ comptée positivement et exprimée en j/kg de carbone consommé. Tous les autres termes ont été définis lors de l'établissement de l'équation 3.36 (chapitre 3). Le tableau A10.1 ci-dessous résume les conditions thermiques des différentes expériences. Pour le calcul de T_b , Une valeur moyenne de 0.02 g/s a été utilisée pour F_c .

TABLEAU A10.1 RÉSUMÉ DES CONDITIONS THERMIQUES DES EXPÉRIENCES

Exp. label	Gaz secondaire		Charge (g)	P moy (kW)	P _a moy (kW)	T _{gi} (°C)	T _b calculée (°C)	T _b mesurée (°C)
	Nature	Débit (SLPM)						
C ₁	CO ₂	10	468	11.6	6.1	3 602	580	--
				20.6	11.8	6 577	1 063	--
C ₂	CO ₂	10	750	11.4	5.6	3 427	552	--
C ₃	CO ₂	10	750	11.5	5.5	3 377	544	400-700
		20		22	11.2	5 577	1 148	--
C ₄	CO ₂	10	1 400	22	11.4	6 527	1 055	600-1000
C ₅	N ₂	10	1 400	21.7	11.8	6 577	1 063	400-1100
C ₆	CO ₂	10	1 473	22.2	11.9	6 602	1 067	500-1000
C ₇	CO ₂	10	750	10.9	4.8	3 152	508	--
C ₈	CO ₂	10	750	10.9	5.4	3 352	540	--
C ₉	CO ₂	10	1 500	21.9	11.1	6 452	1 043	--
C ₁₀	CO ₂	20	1 500	21.8	11.7	5 777	1 190	--

Annexe A11

CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES DES EXPÉRIENCES DE GAZÉIFICATION

Au niveau de l'hydrodynamique du réacteur, l'obscurcissement de la fenêtre de quartz par de la poudre fine noire ne permet aucune observation visuelle. Le calcul de la hauteur de charge maximale, à partir de l'équation établie dans le chapitre 2 (équation 2.18) et des conditions opératoires pour chaque expérience, et la comparaison de cette hauteur à la hauteur statique du lit déduite de la masse chargée dans le réacteur permet d'apprécier le régime hydrodynamique dans le réacteur. Le tableau A11.1 résume les conditions hydrodynamiques au cours des expériences. Dans ce tableau H_{lit} est la hauteur statique du lit déduite de la masse de coke chargée dans le réacteur et H_{max} est la hauteur maximale de lit correspondant à la transition lit fixe-lit soufflé dans les conditions opératoires de l'expérience. H_{max} est calculée à partir de l'équation 2.18 établie au chapitre 2.

La valeur du rapport $\frac{H_{lit}}{H_{max}}$ permet d'apprécier la qualité du régime hydrodynamique. Pour $\frac{H_{lit}}{H_{max}} \geq 0.8$ le régime est de type lit soufflé cohérent et pour $\frac{H_{lit}}{H_{max}} \leq 0.5$, le régime est de type lit à jet. Pour $0.5 \leq \frac{H_{lit}}{H_{max}} \leq 0.8$, le régime est de type lit soufflé incohérent. Pour les expériences faites avec du coke de taille fine (C_7 à C_{10}), la valeur de H_{max} n'a pu être calculée à l'aide de l'équation (2.18). On effectue dans ce cas, la taille des particules ($d_p = 175\mu m$) est en dehors du domaine de validité de l'équation 2.18. Cependant on sait que H_{max} augmente lorsque la taille des particules diminue et le régime hydrodynamique pour ces expériences est de type lit à jet. L'élutriation excessive observée dans ce cas là est en accord avec cette supposition.

TABLEAU A11.1 RÉSUMÉ DES CONDITIONS HYDRODYNAMIQUES DES EXPÉRIENCES

Exp. label	gaz secondaire		Charge (g)	P _{th} moy (kW)	H _{max} (mm)	H _{lit} (mm)	$\frac{H_{lit}}{H_{max}}$	Type du régime
	Nature	Débit (SLPM)						
C ₁	CO ₂	10	468	6.1	213	149	0.7	lit soufflé incohérent
				11.8	271	149	0.55	lit à jet
C ₂	CO ₂	10	750	5.6	196	177	0.9	lit soufflé cohérent
C ₃	CO ₂	10	750	5.5	199	177	0.89	lit soufflé cohérent
		20		11.2	270	177	0.66	lit soufflé incohérent
C ₄	CO ₂	10	1 400	11.4	262	229	0.87	lit soufflé cohérent
C ₅	N ₂	10	1 400	11.8	271	229	0.85	lit soufflé cohérent
C ₆	CO ₂	10	1 473	11.9	273	235	0.86	lit soufflé cohérent
C ₇	CO ₂	10	750	4.8	--	164	--	lit à jet
C ₈	CO ₂	10	750	5.4	--	164	--	lit à jet
C ₉	CO ₂	10	1 500	11.1	--	215	--	lit à jet
C ₁₀	CO ₂	20	1 500	11.7	--	215	--	lit à jet

NOMENCLATURE

Ar	nombre d'Archimède ($\frac{gd_p^3\rho_f(\rho_s-\rho_f)}{\mu^2}$), sans dimension
Cp	capacité calorifique, [J/kg.K]
Cp _s	capacité calorifique du solide, [J/kg.K]
Cp _f	capacité calorifique du fluide, [J/kg.K]
Cp _g	capacité calorifique du gaz, [J/kg.K]
Cp _R	capacité calorifique de la carcasse du réacteur, [J/kg.K]
d _p	diamètre moyen des particules, [m]
d _{pi}	diamètre moyen entre deux tamis successifs, [m]
D _c	diamètre de la colonne cylindrique du réacteur, [m]
D _i	diamètre de la sortie de la buse, [m]
D _o	diamètre de l'entrée du lit, [m]
D _b	diamètre à la surface du lit, [m]
D _{jH}	diamètre du jet à la sortie du lit, [m]
Fc	taux de consommation du carbone, [g/s]
g	accélération de la pesanteur, [m/s ²]
h	enthalpie spécifique moyenne du plasma à la sortie de l'anode, [J/kg] ou coefficient d'échange de chaleur, [W/m ² .K]
h _p	coefficient d'échange de chaleur fluide-particule, [W/m ² .K]
h _w	coefficient d'échange de chaleur lit granuleux - paroi du réacteur, [W/m ² .K]
h _{global}	coefficient d'échange de chaleur global entre le lit et l'environnement du réacteur, [W/m ² .K]
h _r	coefficient de pertes par rayonnement de la paroi vers l'environnement, [W/m ² .K]
h _{rf}	coefficient de pertes par rayonnement des particules dans la fontaine vers l'environnement, [W/m ² .K]
h _c	coefficient de pertes par convection de la paroi vers l'environnement, [W/m ² .K]
H	hauteur statique du lit, [m]
H _m	hauteur maximale de soufflage, [m]
H _f	hauteur de la fontaine, [m]
I	courant d'arc, [A]
k	conductivité thermique, [W/m.K]
k _{er}	conductivité thermique apparente du lit dans la direction radiale, [W/m.K]
k _f	conductivité thermique du fluide, [W/m.K]
l	longueur d'arc, [m]
L	longueur, [m]
m _b	masse de solide dans le réacteur, [kg]
m _f	masse des particules en suspension dans la fontaine, [kg]
m _R	masse de la carcasse du réacteur, [kg]
\dot{m}_g	débit massique du gaz, [kg/s]
\dot{m}_{et}	débit massique d'eau de refroidissement de la torche, [kg/s]
\dot{m}_{er}	débit massique d'eau de refroidissement du réacteur, [kg/s]
M	flux de quantité de mouvement du gaz à l'entrée du lit, [kg.m/s ²]

n	ordre d'une réaction, sans dimension ou nombre de moles, [moles]
\dot{n}, F	débit molaire, [mole/s]
Nu	nombre de Nusselt ($\frac{h_p d_p}{k_f}$), sans dimension
P	pression totale des gaz, [atm]
P_j	pression partielle du gaz en indice, [atm]
P_e	puissance électrique dissipée dans la torche, [kW]
P_{TP}	puissance perdue au niveau de la torche, [kW]
P_{th}	puissance thermique nette transférée au jet de plasma à la sortie de la torche, [kW]
P_{RP}	puissance perdue au niveau du réacteur, [kW]
P_{RR}	puissance thermique récupérée par l'eau de refroidissement du réacteur, [kW]
P_{Ri}	puissance thermique perdue au niveau du réacteur dans les parties non refroidies à l'eau, [kW]
P_{RS}	puissance thermique stockée dans la carcasse du réacteur, [kW]
P_{SS}	puissance thermique stockée dans le solide granuleux, [kW]
$P_{ga}, \Delta h_{ge}$	puissance thermique véhiculée par les gaz à la sortie du réacteur, [kW]
Pr	nombre de Prandtl ($\frac{C_p \mu}{k}$), sans dimension
Q_{VST}, \dot{Q}_g	débit volumique du gaz dans les conditions standard, [SLPM]
Q	puissance, [kW]
Q_T	puissance totale fournie par le plasma à la particule, [kW]
Q_{cp}	puissance absorbée au cours du chauffage de la particule, [kW]
Q_v	puissance absorbée par le chauffage des vapeurs, [kW]
Q_R	puissance perdue par rayonnement des particules, [kW]
Q_C	puissance perdue dans la partie conique, [kW]
Q_{Rf}	puissance perdue par rayonnement des particules dans la fontaine, [kW]
Q_{res}	puissance résiduelle pour la fermeture des bilans thermiques sur le réacteur, [kW]
r	position radiale à partir du centre du réacteur, [m]
\dot{r}	vitesse spécifique de réaction, [s ⁻¹] ou [g/g/min]
R	rayon, [m]
Re_{pms}	nombre de Reynolds au minimum de soufflage ($\frac{\rho_f d_p U_{ms}^i}{\mu}$), sans dimension
S	aire d'une section de la colonne cylindrique, [m ²]
S_i	aire de la section de sortie de l'anode, [m ²]
S_p	surface externe de la particule, [m ²]
S_{pf}	surface totale des particules dans la fontaine, [m ²]
S_z	section du réacteur à la côte z, [m ²]
S_{pz}	surface totale des particules dans la tranche de lit dz, [m ²]
S_{sp}	surface spécifique de la poudre, [m ² /g]
St_{ms}	nombre de Stokes ($\frac{\rho_s U_{ms} d_p^2}{\mu D_i}$), sans dimension
t	temps, [s]
T	température, [K]
T_{fe}, T_{∞}	température enthalpique moyenne du plasma à la sortie de l'anode, [K]
T_b	température moyenne du lit de poudre, [K]

T_p	température de la particule, [K]
T_F	température moyenne du film ($\frac{(T_b+T_\infty)}{2}$), ou température des particules dans la fontaine, [K]
T_a	température ambiante, [K]
T_w	température de la paroi du réacteur
T_{ee}	température d'entrée d'eau de refroidissement, [K]
T_{es}	température de sortie d'eau de refroidissement, [K]
T_{po}	température initiale de la particule, [K]
T_g	température du gaz, [K]
T_{gi}	température du gaz à l'entrée du lit, [K]
T_{ge}	température du gaz à la sortie du lit, [K]
u_t	vitesse terminale de chute libre d'une particule, [m/s]
U_{ms}	vitesse minimale de soufflage référée au diamètre de la colonne, [m/s]
U_{ms}^o	vitesse minimale de soufflage référée au diamètre d'entrée du lit, [m/s]
U_{ms}^i	vitesse minimale de soufflage référée au diamètre de sortie de la buse, [m/s]
U_i	vitesse moyenne du jet à la sortie de la buse, [m/s]
U	vitesse superficielle du gaz, [m/s]
U_∞	vitesse moyenne du gaz dans la section supérieure du réacteur, [m/s]
U_{pjH}	vitesse d'une particule dans le jet à la sortie du lit, [m/s]
V	chute de tension aux bornes de l'arc, [V]
w	masse de solide dans le réacteur à l'instant t, [kg]
\dot{w}_{cr}	taux de circulation du solide au dessus du lit, [kg/s]
x_i	pourcentage massique des particules de diamètre d_{pi} , [%]
X	taux d'avancement de la réaction, sans dimension
Y_j	fraction molaire du gaz en indice, sans dimension
z	position verticale à partir de la sortie de l'anode (entrée du lit), [m]

Lettres grecques

ψ	facteur de sphéricité, sans dimension
δ	paramètre ($\frac{\dot{m}_g C_{pg}}{m_b C_{ps}} + \frac{h_{rf} S_{pf}}{m_b C_{ps}} + \frac{h_{global} S_w}{m_b C_{ps}}$), [s ⁻¹]
λ	paramètre ($\frac{\dot{m}_g C_{pg}}{m_b C_{ps}}$), [s ⁻¹]
π_i	nombre adimensionnel (i = 1, 2, 3 ...7), sans dimension
ε	porosité, sans dimension ou émissivité, sans dimension
ε_p	émissivité d'une particule, sans dimension
ε_z	porosité moyenne du lit dans la tranche dz, sans dimension
ε_{ms}	porosité du lit au minimum de soufflage, sans dimension
ε_{jH}	porosité du jet (taux de vide) du jet à la sortie du lit, sans dimension
η	rendement énergétique de la torche, sans dimension
ρ_s	masse volumique du solide, [kg/m ³]
ρ_f	masse volumique du fluide, [kg/m ³]
ρ_g	masse volumique du gaz, [kg/m ³]

ρ_p	masse volumique de la particule, [kg/m ³]
ρ_{ST}	masse volumique du fluide dans les conditions standard, [kg/m ³]
ρ_b	masse volumique apparente du solide granuleux, [kg/m ³]
μ, μ_f	viscosité dynamique du fluide, [kg/m.s]
ν	viscosité cinématique du fluide, [m ² /s]
α	angle d'ouverture du cône, [degrés]
τ_f	temps de séjour des particules dans la fontaine, [s]

Indices

s	relatif au solide ou à la sortie
f	relatif au fluide ou à la fontaine
g	relatif au gaz
R	relatif au réacteur ou au rayonnement
r	relatif au rayon
p	relatif à la particule
c	relatif à la colonne ou à la convection
C	relatif à la zone conique
i	relatif à la sortie de l'anode
o	relatif à l'entrée du lit
b	relatif au lit "bed"
j	relatif au jet
H	relatif au niveau de la surface du lit
w	relatif à la paroi externe du réacteur
T	relatif à la torche ou à total
e	relatif à l'entrée ou à l'eau
P	relatif aux pertes
ms	relatif au minimum de soufflage
cr	relatif à circulation
ST	relatif à standard